# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

2001-052870

(43)Date of publication of application: 23.02.2001

(51)Int.CI.

HO5B 33/14 CO9K 11/06 H05B 33/12 H05B 33/22 H05B 33/26

(21)Application number: 11-345071

(71)Applicant : TDK CORP

(22)Date of filing:

03.12.1999

(72)Inventor: KOBORI ISAMU

**INOUE TETSUJI FUJITA TETSUJI** NAKATANI KENJI

(30)Priority

Priority number: 11157176

Priority date: 03.06.1999

Priority country: JP

# (54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To efficiently emit the blue light with excellent reliability by including a hole injection transporting compound and/or an electron injection transporting compound included in a hole transfer layer and/or an electron transfer layer as a host compound in a blue light emitting layer.

SOLUTION: As a host compound to be included in a blue light emitting layer, a compound, which emits the blue light, such as a phenylanthracene derivative is desirably used. In the case where the host material of the blue light emitting layer does not have the blue light emitting characteristic, a dopant can be used so as to change the light emitting characteristic for blue light emission, and as a dopant, a styryl group amine compound or the like is used. As the blue light emitting layer, a mixture layer of an electron injection and transfer compound (A) and a hole injection and transfer compound (B) can be used. In this case, the component A and the component B can be mixed evenly, or distributed in the film thickness direction so that concentration of the component B is higher at a hole transfer layer side and that concentration of the component A is higher at the electron transfer layer side.

## **LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

29.07.2005

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or

application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

フィーン

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

#### (19) 日本国特許庁 (JP)

## (12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号 特開2001-52870 (P2001-52870A)

(43)公開日 平成13年2月23日(2001.2.23)

(51) Int.Cl.7	饑別記号	F I	テーマコード(参考)
H05B 33/1		H 0 5 B 33/14	В
C09K 11/0		C09K 11/06	620
H05B 33/1		H 0 5 B 33/12	С
			E
33/2	2	33/22	A
•	審查請求	未請求 請求項の数27 〇]	. (全 49 頁) 最終頁に続く
(21)出願番号	特顧平11-345071	(71)出顧人 000003067	
(22)出廣日	平成11年12月 3日(1999.12.3)	東京都中央	ーケイ株式会社 区日本橋1丁目13番1号
(31)優先権主張番		1	区日本橋一丁目13番1号 ティ
(32)優先日	•	1	<b>イ株式会社内</b>
(33)優先権主張国	日本(JP)	(72)発明者 井上 鉄司	
		,	区日本橋一丁目13番1号 ティ
			<b>イ株式会社内</b>
		(74)代理人 100082865	
		弁理士 石	井 陽一

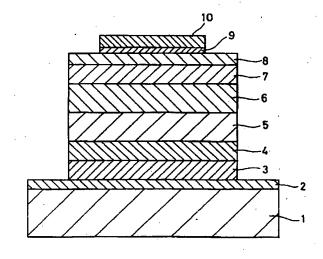
最終頁に続く

### (54) 【発明の名称】 有機EL素子

#### (57)【要約】 (修正有)

【課題】 青色発光光が効率よく得られ、さらには青色発光を含めた多色発光への対応が可能で、かつ高輝度で長寿命の有機EL素子を提供する。

【解決手段】 発光層に隣接するホール輸送層4 および/または電子輸送層7 中のホール注入輸送性化合物および/または電子注入輸送性化合物をホスト材料とする青色発光層を設けるか、青色発光層とアルカリ金属のハロゲン化物または酸化物を構成材料とした陰極とを組み合わせた有機EL素子とする。



#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 発光層と、この発光層に隣接するホール 輸送層および/または電子輸送層を有し、前記発光層が 青色発光層を含む1層または2層以上で構成され、前記 青色発光層が前記ホール輸送層および/または電子輸送 層中のホール注入輸送性化合物および/または電子注入 輸送性化合物をホスト化合物として含有する有機EL素 ス

(請求項2) ホスト化合物が青色発光する化合物である請求項1の有機EL素子。

【請求項3】 ホスト化合物がフェニルアントラセン誘導体から選ばれる請求項2の有機EL素子。

(請求項4) ドーパントを含有し、ドーパントにより 青色発光する請求項1の有機EL素子。

【請求項5】 ホール輸送層および電子輸送層を有し、 青色発光層が前記ホール輸送層および電子輸送層中のホ ール注入輸送性化合物および電子注入輸送性化合物の混 合層である請求項1の有機EL素子。

【請求項6】 骨色発光層がフェニルアントラセン誘導体および芳香族三級アミンの混合層である請求項5の有 20 機EL素子。

【請求項7】 混合層でのホール注入輸送性化合物および電子注入輸送性化合物の濃度分布が均一である請求項5または6の有機EL素子。

【請求項8】 混合層でのホール注入輸送性化合物および電子注入輸送性化合物が膜厚方向で濃度分布を有し、ホール輸送層側にてホール注入輸送性化合物の濃度が高く、電子輸送層側にて電子注入輸送性化合物の濃度が高\*

\*い請求項5または6の有機EL素子。

【請求項9】 さらにドーパントがドープされた混合層である請求項5~8のいずれかの有機EL素子。

【請求項10】 混合層全体で青色発光する請求項5~9のいずれかの有機EL素子。

【請求項11】 電子輸送層側に設けられる陰極の構成 材料が、アルカリ金属のハロゲン化物および酸化物から 選ばれる少なくとも1種の化合物を含む請求項 $1\sim10$ のいずれかの有機EL素子。

10 【請求項12】 陰極の構成材料がRbおよびCsのハロゲン化物から選ばれる少なくとも1種の化合物を含む 請求項11の有機EL素子。

【請求項13】 陰極と、青色発光層を含む1層または2層以上の発光層と、ホール輸送層および/または注入層と、陽極とを有し、前記陰極の構成材料が、アルカリ金属のハロゲン化物および酸化物から選ばれる少なくとも1種の化合物を含む有機EL素子。

【請求項14】 青色発光層が青色発光する化合物としてフェニルアントラセン誘導体を含有する請求項13の 有機EL素子。

【請求項15】 ホール輸送および/または注入層が芳香族三級アミンを含有する請求項13または14の有機 EL素子。

【請求項16】 芳香族三級アミンが式(1) および式(2) で表される化合物から選ばれる請求項15の有機 EL素子。

【化1】

$$(R_3)_{:5}$$
 $(R_6)_{:6}$ 
 $(R_6)_{:6}$ 
 $(R_1)_{:1}$ 
 $(R_2)_{:2}$ 
 $(R_2)_{:2}$ 

[式(1)において、R、、R、、R、およびR、は、 それぞれアリール基、アルキル基、アルコキシ基、アリ ールオキシ基またはハロゲン基を表し、

 $r_1$ 、 $r_2$ 、 $r_3$ および $r_4$ は、それぞれ $0\sim5$ の整数であり、 $r_1$ 、 $r_2$ 、 $r_3$ および $r_4$ が、それぞれ2以上の整数 40 のとき、隣接する $R_1$ 同士、 $R_2$ 同士、 $R_3$ 同士および $R_4$ 同士は、それぞれ互いに結合して環を形成してもよい。 $R_3$  および $R_4$  は、それぞれアルキル基、アルコキシ基、アミノ基またはハロゲン基を表し、

r,およびr,は、それぞれ0~4の整数である。]

[(£2]  $(R_{01})r_{01}$   $(R_{04})r_{04}$  $(R_{02})r_{02}$   $(R_{03})r_{03}$  (2)

[式(2) において、φはフェニレン基を表し、 Roi、Roi、RoiおよびRoiは、それぞれ、アルキル 基、アリール基、ジアリールアミノアリール基、 【化3】

(ここで、R<sub>011</sub>、R<sub>012</sub>、R<sub>013</sub>、R<sub>014</sub>、R<sub>015</sub>、R<sub>016</sub>およびR<sub>017</sub>は、 それぞれ、アリール基を表す。)

リールアミノアリール基、または前記 (a-1)~(a -3) のいずれかを表す。 ro1、ro2、ro3 およびro4 は、それぞれ0~5の整数であり、

ro1+ro2+ro3+ro4は1以上の整数である。ro1、 r。,、r。,およびr。,が、それぞれ2以上の整数である とき、隣接するR。」同士、R。」同士、R。」同士およびR 。,同士は、それぞれ互いに結合して環を形成してもよ ( )° ( )

【請求項17】 ホール注入層およびホール輸送層を有 し、陽極側のホール注入層が式(2)で表される化合物 20 を含有し、発光層側のホール輸送層が式(1)で表され る化合物を含有する請求項15または16の有機EL素

【請求項18】 青色発光層のほかに、これとは発光波 長の異なる少なくとも1層の発光層を有する請求項1~ 17のいずれかの有機EL素子。

【請求項19】 青色発光層とは発光波長の異なる少な くとも1層の発光層がホール注入輸送性化合物および電 子注入輸送性化合物の混合層である請求項18の有機 E L索子。

【請求項20】 さらにドーパントがドープされた混合 層である請求項19の有機EL素子。

【請求項21】 2層の発光層を有する請求項18~2 0のいずれかの有機EL素子。

【請求項22】 3層の発光層を有する請求項18~2 0のいずれかの有機EL素子。

【請求項23】 白色発光する請求項21または22の 有機EL素子。

【請求項24】 カラーフィルターを用い、このカラー フィルターと組み合わせて、発光色を変調させる請求項 40 1~23のいずれかの有機EL素子。

【請求項25】 互いに対向する、少なくとも一方が透 明な一対の電極を有し、との一対の電極間に前記発光層 を含む有機層が挟持されており、この一対の電極の透明 電極側に前記カラーフィルターが設置されている請求項 24の有機EL素子。

【請求項26】 それぞれが複数の電極で構成され、互 いに交差し、かつ対向する位置に配列された、少なくと も一方が透明な一対のXYマトリックス型電極を有し、 交差した前記電極間に前記発光層を含む有機層が挟持さ

のいずれかを表し、R。1~R。1の少なくとも一つはジア 10 れており、この交差部分が画素を形成し、この画素の透 明電極側に前記カラーフィルターが設置されている請求 項24の有機EL素子。

> 【請求項27】 前記画素の周辺部であって、前記カラ ーフィルターの設置部位近傍にブラックマトリックスが 設置されている請求項26の有機EL素子。

【発明の詳細な説明】

[0001]

[発明の属する技術分野] 本発明は、有機EL(電界発 光) 素子に関する。

[0002]

【従来の技術】有機EL素子は、蛍光性有機化合物を含 む薄膜を陰極と陽極とで挟んだ構成を有し、薄膜に電子 および正孔を注入して再結合させることにより、励起子 (エキシトン)を生成させ、このエキシトンが失活する 際の光の放出 (蛍光・燐光) を利用して発光する素子で

[0003]有機EL素子は、10V以下の低電圧で1 00~100.000cd/m²程度の高輝度の面発光が可 能である。また、蛍光物質の種類を選択することによ 30 り、青色から赤色までの発光が可能である。

[0004]一方、有機EL素子の問題点は、発光寿命 が短く、保存耐久性、信頼性が低いことであり、この原 因としては、

### (1)有機化合物の物理的変化

(結晶ドメインの成長などにより界面の不均一化が生 じ、素子の電荷注入能の劣化・短絡・絶縁破壊の原因と なる。特に分子量500以下の低分子化合物を用いると 結晶粒の出現・成長が起こり、膜性が著しく低下する。 また、陽極に用いられるITO等の界面が荒れていて も、顕著な結晶粒の出現・成長が起こり、発光効率の低 下や、電流のリークを起とし、発光しなくなる。また、 部分的非発光部であるダークスポットの原因にもな

[0005](2)陰極の酸化・剥離

(電子の注入を容易にするために、陰極には仕事関数の 小さな金属としてNa・K・Li・Mg・Ca・Al等 が用いられてきたが、これらの金属は大気中の水分や酸 素と反応したり、有機層と陰極との剥離が起こり、電荷 注入ができなくなる。特に、髙分子化合物などを用い、

50 スピンコートなどで成膜した場合、成膜時の残留溶媒・

5

水分や分解物が電極の酸化反応を促進し、電極の剥離が 起こり、部分的な非発光部を生じさせる。)

【0006】(3)発光効率が低く、発熱量が多いこと (有機化合物中に電流を流すので、高い電界強度下に有 機化合物を置かねばならず、発熱からは逃れられない。 その熱のため、有機化合物の溶融・結晶化・熱分解など により、素子の劣化・破壊が起こる。)

【0007】(4)有機化合物層の光化学的変化・電気 化学的変化

(有機物に電流を流すことで有機物が劣化し、電流トラ 10 ップ・励起子トラップ等の欠陥を生じ、駆動電圧の上 昇、輝度の低下等の素子劣化が起こる。)などが挙げら れる。

【0008】有機E L素子は、上述のように、多色発光の実現を可能にするものであるが、有機E L素子の多色発光化に対応するものとして、積層型白色発光有機E L素子が提案されている [佐藤佳晴、信学技報、OME -94-78(1995-03)]。この場合の発光層は、亜鉛のオキサゾール錯体を用いた青色発光層、トリス(8-キノリノラト)アルミニウムを用いた緑色発光 20層およびトリス(8-キノリノラト)アルミニウムに赤色の蛍光色素(P-660、DCM1)をドーブした赤色発光層を積層したものである。

【0009】また、本発明者等は、先に、多色発光を目的とするものとして、上述のような素子では材料選定や発光色の調整の自由度が大きく制限されることなどから、ドーパントの添加により多色発光させる技術を提案している(WO98/08360号)。具体的には、トリス(8-キノリノラト)アルミニウムとN,N,N',N'-テトラキス-(3-ピフェニル-1-イル)ベンジジンとの混合層にルブレンや30クマリン誘導体のドーパントを添加するものであり、混合層における混合比やドーパント種を変えることで、その発光特性を変化させ、多色発光を可能にするものであると

【0010】しかし、そとに具体的に開示される発光色は赤〜緑に対応するものであり、青に対応するものではない。

[0011] そこで、青の発光色を安定して得ることが 望まれるが、それに付随する特有の問題があり、発光材 料のみならず組み合わせる種々の材料の選定が必要とな 40

#### [0012]

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、青色 発光光が効率よく得られる信頼性に優れた有機EL素子を提供することであり、さらには青色発光を含めた多色 発光への対応が可能で、かつ高輝度で長寿命の有機EL素子を提供することである。さらには、その優れた特性 を生かし、さらにカラーフィルターを組み合わせることにより多色発光有機ELディスプレイの作製が可能になる有機EL素子を提供することである。

[0013]

【課題を解決するための手段】 このような目的は、下記 の本発明によって達成される。

6

- (1) 発光層と、この発光層に隣接するホール輸送層 および/または電子輸送層を有し、前記発光層が青色発 光層を含む 1層または2層以上で構成され、前記青色発 光層が前記ホール輸送層および/または電子輸送層中の ホール注入輸送性化合物および/または電子注入輸送性 化合物をホスト化合物として含有する有機EL素子。
- (2) ホスト化合物が青色発光する化合物である上記
- (1)の有機EL素子。
- (3) ホスト化合物がフェニルアントラセン誘導体か ち選ばれる上記(2)の有機EL素子。
- (4) ドーパントを含有し、ドーパントにより青色発 光する上記(1)の有機EL素子。
- (5) ホール輸送層および電子輸送層を有し、骨色発 光層が前記ホール輸送層および電子輸送層中のホール注 入輸送性化合物および電子注入輸送性化合物の混合層で ある上記(1)の有機EL索子。
- 0 (6) 骨色発光層がフェニルアントラセン誘導体および芳香族三級アミンの混合層である上記(5)の有機E L素子。
  - (7) 混合層でのホール注入輸送性化合物および電子 注入輸送性化合物の濃度分布が均一である上記(5)ま たは(6)の有機EL素子。
  - (8) 混合層でのホール注入輸送性化合物および電子 注入輸送性化合物が膜厚方向で濃度分布を有し、ホール 輸送層側にてホール注入輸送性化合物の濃度が高く、電 子輸送層側にて電子注入輸送性化合物の濃度が高い上記 (5)または(6)の有機EL素子。
  - (9) さらにドーパントがドープされた混合層である 上記  $(5) \sim (8)$  のいずれかの有機EL素子。
  - (10) 混合層全体で青色発光する上記(5)~(9)のいずれかの有機EL素子。
  - (11) 電子輸送層側に設けられる陰極の構成材料が、アルカリ金属のハロゲン化物および酸化物から選ばれる少なくとも1種の化合物を含む上記(1)~(10)のいずれかの有機EL素子。
- (12) 陰極の構成材料がRbおよびCsのハロゲン化物から選ばれる少なくとも1種の化合物を含む上記(11)の有機EL素子。
  - (13) 陰極と、青色発光層を含む1層または2層以上の発光層と、ホール輸送層および/または注入層と、陽極とを有し、前記陰極の構成材料が、アルカリ金属のハロゲン化物および酸化物から選ばれる少なくとも1種の化合物を含む有機EL素子。
  - (14) 青色発光層が青色発光する化合物としてフェニルアントラセン誘導体を含有する上記(13)の有機 EL素子。
- 50 (15) ホール輸送および/または注入層が芳香族三

級アミンを含有する上記(13)または(14)の有機 E L素子。

芳香族三級アミンが式(1)および式(2) (16)で表される化合物から選ばれる上記(15)の有機EL\*

$$(R_3)_{r3}$$
 $(R_5)_{r5}$ 
 $(R_6)_{r6}$ 
 $(R_6)_{r6}$ 
 $(R_2)_{r2}$ 
 $(R_2)_{r2}$ 

[0015] [式(1) において、R1、R1、R1、R1 お よびR、は、それぞれアリール基、アルキル基、アルコ キシ基、アリールオキシ基またはハロゲン基を表し、r r, およびr,は、それぞれ0~5の整数であ り、 $r_1$ 、 $r_2$ 、 $r_3$ および $r_4$ が、それぞれ2以上の整数 のとき、隣接するR、同士、R、同士、R、同士およびR、 同士は、それぞれ互いに結合して環を形成してもよい。 R, およびR, は、それぞれアルキル基、アルコキシ 基、アミノ基またはハロゲン基を表し、r,およびr 。は、それぞれ0~4の整数である。] [0016]

【0017】[式(2) において、ゆはフェニレン基を 表し、Roi、Roi、RoiおよびRoiは、それぞれ、アル 20 キル基、アリール基、ジアリールアミノアリール基、

[0018] [化6]

(ここで、R<sub>011</sub>、R<sub>012</sub>、R<sub>013</sub>、R<sub>014</sub>、R<sub>015</sub>、R<sub>016</sub>およびR<sub>017</sub>は、 それぞれ、アリール基を表す。)

Ж

【0019】のいずれかを表し、R。,~R。,の少なくと も一つはジアリールアミノアリール基、または前記(a -1)~(a-3)のいずれかを表す。 roi、roi、r 。,および r 。。は、それぞれ0~5の整数であり、 r 。, +  $r_{02}+r_{03}+r_{04}$ は1以上の整数である。 $r_{01}$ 、 $r_{02}$ 、 r。,およびr。,が、それぞれ2以上の整数であるとき、 隣接するR。』同士、R。』同士、R。』同士およびR。。同士 は、それぞれ互いに結合して環を形成してもよい。]

- (17) ホール注入層およびホール輸送層を有し、陽 極側のホール注入層が式(2)で表される化合物を含有 し、発光層側のホール輸送層が式(1)で表される化合 物を含有する上記(15)または(16)の有機EL素 子。
- (18) 青色発光層のほかに、これとは発光波長の異 なる少なくとも1層の発光層を有する上記(1) $\sim$ (1 7)のいずれかの有機EL素子。
- (19) 青色発光層とは発光波長の異なる少なくとも 1層の発光層がホール注入輸送性化合物および電子注入 輸送性化合物の混合層である上記(18)の有機EL素 50 差し、かつ対向する位置に配列された、少なくとも一方

子。

- さらにドーパントがドープされた混合層であ (20)る上記(19)の有機EL素子。
- 2層の発光層を有する上記(18)~(2 (21)O)のいずれかの有機EL素子。
- 3層の発光層を有する上記(18)~(2 (22)
- 0)のいずれかの有機EL素子。
- 白色発光する上記(21)または(22)の (23)有機EL素子。
- (24) カラーフィルターを用い、このカラーフィル ターと組み合わせて、発光色を変調させる上記(1)~ (23)のいずれかの有機EL素子。
- (25) 互いに対向する、少なくとも一方が透明な一 対の電極を有し、との一対の電極間に前記発光層を含む 有機層が挟持されており、この一対の電極の透明電極側 に前記カラーフィルターが設置されている上記(24) の有機EL素子。
- (26) それぞれが複数の電極で構成され、互いに交

10

20

が透明な一対のXYマトリックス型電極を有し、交差した前記電極間に前記発光層を含む有機層が挟持されており、この交差部分が画素を形成し、この画素の透明電極側に前記カラーフィルターが設置されている上記(24)の有機EL素子。

(27) 前記画素の周辺部であって、前記カラーフィルターの設置部位近傍にブラックマトリックスが設置されている上記(26)の有機EL素子。

#### [0020]

【発明の実施の形態】以下、本発明を詳細に説明する。本発明の有機EL素子は、発光層に隣接するホール輸送層および/または電子輸送層中のホール注入輸送性化合物および/または電子注入輸送性化合物をホスト材料とする青色発光層を有するものであるか、あるいはまた青色発光層を有し、かつ陰極材料としてアルカリ金属の塩化物および酸化物から選ばれる化合物を用いたものである。好ましくは、これらの構成を併せもつものであり、青色発光層は、前記のホール注入輸送性化合物と電子注入輸送性化合物との混合層であることが好ましい。さらに詳述する。

[0021] <青色発光層>本発明の有機EL素子は青色発光層を有する。この場合の青色発光する化合物としてはフェニルアントラセン誘導体が好ましく用いられる。これらについては特開平8-12600号公報に記載されている。なかでも、フェニルアントラセン誘導体としては式(A)で表される化合物が好ましい。

#### $A_1 = L - A_2 \qquad (A)$

【0022】式(A) において、A, およびA, は、各々モノ(オルト置換フェニル) アントリル基またはジ(オルト置換フェニル) アントリル基を表し、これらは 30同一でも異なるものであってもよい。 Lは単結合または二価の連結基を表す。

【0023】A、、A、で表されるモノ(オルト置換フェニル)フェニルアントリル基またはジ(オルト置換フェニル)フェニルアントリル基は、フェニル基の2位または6位(アントラセン環への結合位置に対してオルト位)に、アリール基、複素芳香環基もしくはアリールエテニル基を有するものである。また、オルト位以外に置換基を有するものであってもよく、置換基を有する場合の置換基としては、アルキル基、アリール基、アリール 40エテニル基、アルコキシ基、アミノ基等が挙げられ、これらの置換基はさらに置換されていてもよい。これらの置換基については後述する。

【0024】また、アントラセン環におけるフェニル基の結合位置はアントラセン環の9位、10位であることが好ましい。

【0025】式(A) において、Lは単結合または二価の基を表すが、Lで表される二価の基としてはアルキレン基等が介在してもよいアリーレン基が好ましい。このようなアリーレン基については後述する。

[0026]式(A)で示されるフェニルアントラセン 誘導体のなかでも、式(A-1)、式(A-2)で示さ れるものが好ましい。

[0027]

[化7]

$$(R_{52})_{p2}$$
 $Ar_1$ 
 $Ar_2$ 
 $Ar_3$ 
 $Ar_4$ 
 $Ar_$ 

[0028]

[化8]

$$(H_{54})_{p4}$$

$$Ar_{6}$$

$$Ar_{6}$$

$$Ar_{6}$$

$$Ar_{6}$$

$$Ar_{6}$$

$$Ar_{7}$$

$$Ar_{8}$$

$$Ar_{8}$$

$$Ar_{8}$$

$$Ar_{8}$$

$$Ar_{8}$$

[0029]式(A-1) において、Ar, ~Ar ,は、各々水素原子、アリール基、複素芳香環基または アリールエテニル基を表し、Ar、およびAr、の少な くとも一方、ならびにAr、およびAr、の少なくとも 一方は、各々アリール基、複素芳香環基またはアリール エテニル基である。R、、およびR、、は、各々アルキル 基、アリール基、アリールエテニル基、アルコキシ基、 またはアミノ基を表し、これらは同一でも異なるもので あってもよい。p 1 およびp 2 は、各々、0~3の整数 を表し、p1およびp2が、各々、2以上の整数である とき、R,,同士およびR,,同士は各々同一でも異なるも のであってもよい。R,,は、アルキル基またはアリール 基を表し、p3は、各々、0~3の整数を表す。p3 が、2以上の整数であるとき、R;は各々同一でも異な るものであってもよい。L、は単結合またはアリーレン 基を表し、アリーレン基はアルキレン基、-〇-、-S -または-NR-(とこで、Rはアルキル基またはアリ ール基を表す。)が介在するものであってもよい。

[0030]式(A-2)において、Ar,およびAr 。は、各々水素原子、アリール基、複素芳香環基または アリールエテニル基を表し、Ar,およびAr。の少な くとも一方はアリール基、複素芳香環基またはアリール 50 エテニル基である。R,は、各々アルキル基、アリール 基、アリールエテニル基、アルコキシ基、またはアミノ基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。 p 4 は、各々、0~3の整数を表し、p 4 が、各々、2以上の整数であるとき、R 5.4同士は各々同一でも異なるものであってもよい。R 5.5は、アルキル基またはアリール基を表し、p 5 は、各々、0~4の整数を表す。p 5 が、2以上の整数であるとき、R 5.5は各々同一でも異なるものであってもよい。L 2 は単結合またはアリーレン基を表し、アリーレン基はアルキレン基、一〇一、一S一または一NR一(ここで、Rはアルキル基まれ、アリーレン基はアルキレン基、一〇一、一S一または一NR一(ここで、Rはアルキレン基、一〇一、一Sーまたは一NRー(ここで、Rはアルキル基またはアリール基を表す。)が介在するものであってもよい。

【0031】Ar, ~Ar, およびR,,~R,,で表されるアリール基としては、炭素数6~20のものが好ましく、さらにはフェニル基、トリル基等の置換基を有するものであってもよい。具体的には、フェニル基、(0-, m-, p-)トリル基、ピレニル基、ナフチル基、アントリル基、ビフェニル基、フェニルアントリル基、トリルアントリル基等が挙げられる。

【0032】Ar, ~Ar, で表される複素芳香環基と しては、フリル基、ベンゾフリル基、チエニル基、ビチ エニル基、ベンゾチエニル基、ピロリル基、N-アリルピ ロリル基、インドリル基、ビリジル基、ビビリジル基、 キノリル基、キノキサリル基、オキサゾール基、ベンゾ オキサゾール基、オキサジアゾール基、チアゾール基、 ベンゾチアゾール基、チアジアゾール基、イミダゾール 基等が好ましく、さらには、炭素数42以下のアリール 30 基、炭素数12以下のアルキル基、アルコキシ基、アリ ーロキシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基等の置換基 を有するものであってもよい。具体的には、置換基とし て、フェニル基、(o-,m-,p-) ビフェニル基、 (1, 2) ナフチル基、メチル基、エチル基、プロピル 基、ブチル基、メトキシ基、エトキシ基、フェノキシ 基、(o-, m-, p-)トリル基等が挙げられる。 【0033】Ar, ~Ar, 、R,,およびR,,で表され るアリールエテニル基としては、2-フェニルエテニル 基、2,2-ジフェニルエテニル基等が好ましく、さら 40 にはアリール基、アルキル基、アルコキシ基、アリーロ キシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基等の置換基を有 するものであってもよい。具体的には、置換基として、 フェニル基、 (o‐, m‐, p‐) ビフェニル基、 (1,2)ナフチル基、メチル基、エチル基、プロビル 基、ブチル基、メトキシ基、エトキシ基、フェノキシ 基、(o‐, m‐, p‐) トリル基等が挙げられる。 【0034】R、、、~R、、で表されるアルキル基として は、直鎖状でも分岐を有するものであってもよく、炭素

数1~10、さらには1~4の置換もしくは無置換のア

ルキル基が好ましい。特に、炭素数  $1 \sim 4$  の無置換のアルキル基が好ましく、具体的にはメチル基、エチル基、(n-, i-) プロビル基、(n-, i-, s-, t-) ブチル基等が挙げられる。

12

【0035】R、およびR、で表されるアルコキシ基としては、アルキル基部分の炭素数が1~6のものが好ましく、具体的にはメトキシ基、エトキシ基等が挙げられる。アルコキシ基は、さらに置換されていてもよい。【0036】R、およびR、で表されるアミノ基は、無置換でも置換基を有するものであってもよいが、置換基を有するととが好ましく、この場合の置換基としてはアルキル基(メチル基、エチル基等)、アリール基(フェニル基等)などが挙げられる。具体的にはジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジ(mートリル)アミノ基等が挙げられる。

【0037】式 (A-1) において、p1およびp2は、各々、0または1~3の整数を表し、特に、0~2であることが好ましい。p1およびp2が、各々、1~3の整数、特に1または2であるとき、R.,およびR,,20は、各々、メチル基、フェニル基であることが好ましい。

[0038]式 (A-1) において、p3は、各々、0 ~3の整数を表し、特に、0 ~2 であることが好ましい。p3が、各々、1 ~3の整数、特に1 または2 であるとき、 $R_{s,1}$ は、各々、メチル基、フェニル基であることが好ましい。

 $\{0.0-3-9\}$ -式 (A-1)-において、 $R_{51}\sim R_{51}$ は同一でも異なるものであってもよく、 $R_{51}$ 、 $R_{52}$ と $R_{53}$ とが各々複数存在するとき、 $R_{51}$ 同士、 $R_{52}$ 同士、 $R_{53}$ 同士 は各々同一でも異なるものであってもよい。

[0040]式(A-1)において、L1は単結合またはアリーレン基を表す。L1で表されるアリーレン基としては、無置換であることが好ましく、具体的にはフェニレン基、ピフェニレン基、アントリレン基等の通常のアリーレン基の他、2個ないしそれ以上のアリーレン基が直接連結したものが挙げられる。L1としては、単結合、p-フェニレン基、4、4′ービフェニレン基等が好ましい。

[0041] また、L. で表されるアリーレン基は、2個ないしそれ以上のアリーレン基がアルキレン基、一〇一、一S一または一NR一が介在して連結するものであってもよい。とこで、Rはアルキル基またはアリール基を表す。アルキル基としてはメチル基、エチル基等が挙げられ、アリール基としてはフェニル基等が挙げられる。なかでも、アリール基が好ましく、上記のフェニル基のほか、A. A. であってもよく、さらにはフェニル基にA. またはA. が置換したものであってもよい。また、アルキレン基としてはメチレン基、エチレン基等が好ましい。このようなアリーレン基の具体例を以下に示す。

13

[0042] [化9]

 $\{0043\}$ 次に、式 (A-2) について説明すると、式 (A-2) において、R, は式 (A-1) におけるR, またはR, と、またR, は式 (A-1) におけるR, と、p4は式 (A-1) におけるp1またはp2と、さらにL, は式 (A-1) におけるL, とそれぞれ同義であり、好ましいものも同様である。

【0044】また、式 (A-2) において、p5は、各々、0~4の整数を表し、特に、0~2であることが好ましい。p5が、各々、1~3の整数、特に1または2 40であるとき、R,,は、各々、メチル基、フェニル基であ

ることが好ましい。

【0045】式(A-2)において、R,,とR,,とは同一でも異なるものであってもよく、R,,とR,,が各々複数存在するとき、R,,同士、R,,同士は、各々同一でも異なるものであってもよい。

[0046]式(A-1)において、Ar、およびAr 、の少なくとも一方、Ar、およびAr、の少なくとも 一方がフェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、ス チリル基、フェニルスチリル基、ジフェニルスチリル

10 基、チエニル基、メチルチエニル基、フェニルチエニル 基またはフェニルビチエニル基であることが好ましい。 さらにはAr, およびAr, の少なくとも一方、Ar, およびAr, の少なくとも一方がフェニル基、ピフェニ ル基またはターフェニル基であり、L, は単結合である ことが好ましい。

[0047]式(A-2)において、Ar, およびAr。の少なくとも一方がフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、スチリル基、フェニルスチリル基、ジフェニルスチリル基、チエニル基、メチルチエニル基、フェニルチエニル基またはフェニルビチエニル基であることが好ましい。さらにはAr, およびAr。の少なくとも一方がフェニル基、ビフェニル基またはターフェニル基であり、L, は単結合であることが好ましい。

【0048】式(A-1)、式(A-2)で表される化合物を以下に例示するが、本発明はこれらに限定されるものではない。ここでは式と基の組合せで示しており、R<sub>32-37</sub>等でまとめて示すときは置換基のみを示すものとし、すべて水素原子のときは-Hで示している。また略号は適時示すものとする(なお、Tolyはトリル基である)。

[0049]

【化10】

[0050] [化11]

						(9)						1000	٠
	15											16	
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ars	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	Pe3	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-87</sub>	R <sub>42-47</sub>	
1-1	—Ph	—н	-Ph	-н	-н	—н	-н	—н	<b>−</b> н.	<b>-</b> H	—н	<del>-</del> н	
1-2	Ph	-н	—Ph	-н	—Ph	—н	<u>-</u> н	—Ph	-н	—н	—н	<del>_</del> н	
1-3	—Ph	<b>-</b> H	-Ph	—н	—н	—Ph	—н	—н	—Ph	—н	-+	н	
1-4	—Ph	-н	-Ph	—н	—н	—н	Ph	<b>-</b> н	—н	—Ph	-н	—н	
1-5	Ph	<b>-</b> н	—Ph	—н	—Me	—н	—н	-Me	—н	<del></del> н	—н	—н	
1-6	-Ph	н	Ph	-н	-н	-Me	—н	-н	-Me	—н	-н	н :	
1-7	Ph	—н	—Ph	-н	-н	-н	Me	—н	-н	—Ме	~++	—н	
1-8	Ph	-н	-Ph	—н	—н	-OPh	—н	÷н	-OPh	<b>-</b> +	—н	<del></del> H	
1-9	Ph	-н	-Ph	—н	-н	OMe	Н	—н	-OMe	-1	-н	-н	
1-10	—Ph	—н	—Ph	—н	-н	<b>→</b>	<b>-</b> н	—н	<b>-{□}</b> -M	le —⊦	-н	-н	
1-11	. —Ph	—н	Ph	—н	-н	—p-Bph	—н	—Ĥ	р-Врі	n —	н —н	—н	
1-12	—Ph	-н	—Ph	—н	-н	-m-Bph	н	—н	—m-Bp	h —	<b>-</b> H	<del>-</del> H	
1-13	-Ph	—н	-Ph	- –н	<u>-</u> н	—o-Bph	—Н	—н	о-Вр	h —	4 —н	—н	
1-14	Ph	н	—Ph	—н	н	-NPh <sub>2</sub>	—н	—н	, —NPh	<sub>2</sub> –	н <u>-</u> -н	-н	
1-15	; <del>P</del> r	. —н	—Ph	—н	н	—N(Toly);	<u>.</u> –н	н	—н(т	xty)2	н —н	—н	
1-16	-Pt	-н	—Ph	—н	н	-@-v@	, –н	_н	<b>-©</b> ~	-@ -	н —н	—н	
1-17	r —Pt	1- <b>–</b> H	Ph	—н	н	- <b>©</b> }-@	) —н	-н	- <del>@</del>	-® -	н —н	—н	

[0051]

	17					•						18
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R42-47
1-18	—Ph	—Ph	-Ph	—Ph	—н	<b>—н</b>	<b>—н</b> .	—н	—н	—н	—н	-н
1-19	—Ph	<b>−Ph</b>	—Ph	—Ph	Ph	<del>_</del> Н	-н	-Ph	—н	<del>-</del> н	-н	-н
1-20	—Ph	—Ph	—Ph	-Ph	—н	—Ph	—н	—н	—Ph	—н	—н	—н
1-21	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—н	—н	Ph	<b>-</b> H .	—н	—Pt	1 —Н	—н
1-22	—Ph	-Ph	—Ph	—Ph	-Me	—н	—н	-ме	—н		ı —н	—н
1-23	—Ph	—Ph	-Ph	—Ph	—н	Me	—н	н	—Ме		<b>—</b> Н	—н
1-24	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—н	-н	—Me	—н	—н	-м	юн	—н
1-25	—Ph	—Ph	—Ph	Ph	—н	-OPh	—н	.—н	-OPh	-	- –н	—н
1-26	—Ph	Ph	—Ph	—Ph	-н	—О <b>М</b> в	—н	<del>-</del> н	-OMe	}	—н	—н
1-27	Ph	Ph	Ph	—Ph	_н	<b>-√</b> }-Me	<del>-</del> н -	<b>√</b> }-M	<b>—</b> Н		ı <del>. –</del> н	н
1-28	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	-н	—p-Bph	—н	—н	p-Bph	-+	н —н	-н
1-29	—Ph	—Ph	Ph	—Ph	-н	-m-Bph	—н	<del>_</del> H	—m-Bph	-	н —н	—н
1-30	—Ph	Ph	—Ph	Ph	-н	o-Bph	н	н	—о-Врһ	-	н —н	н
1-31	—Ph	Ph	—Ph	—Ph	Н	-NPh <sub>2</sub>	-н	—н	-NPh <sub>2</sub>	-1	4 —н	-н
1-32						-N(Toly);		H	—N(Toly			
1-33						-@~ve			-@-√			
1-34	—Ph	—Ph	Ph	—Ph	-н	-0 <sub>2</sub> -6	<b>)</b> —н	-н	~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~	Ðı	н —н	—н

[0052]

【化13】

	19											20
No.	Ar <sub>1</sub>	Arg	Ara	Ar <sub>4</sub>	R <sub>19</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R42-47
1-35	p-Bph	-н	—p-Bph	<u>-</u> н	-н	-н	-н	-н	-н-	—н	—н	—н
1-38	p-Bph	—н	—p-8ph	-н	—Ph	,—н	-н	—Ph	—н	· —н	—н	-н
1-37	p-8ph	-н	—p-Bph	-н	-н	—Ph	—н	∸H	-Ph	-н	—н	—н
1-38	—p-8ph	-н	—p-Bph	-н	-н	—н	—Ph	—н	—н	Ph	—н	—н
1-39	-m-Bph	-н	-m-Bph	—н	-н	—н	-н	—н	⊣н	—н	-н	—н
1-40	-m-Bph	<u>-</u> н	m-Bph	—н	—Ph	-н	-н	—Ph	—н	<del>-</del> н	-н	—н
1-41	-m-Bph	ΞН	-m-Bph	—н	—н	—Ph	—н	—н	—Ph	—н	-н	-н
1-42	—m-8ph	-н	m-Bph	-н	—н	—н .	Ph	н	_н	Ph	-н	<b>-</b> н .
1-43	-o-Bph	-н	-o-8ph	—н	—н	—н	—н	<del></del> н	—н	_н	<b>—н</b> і	—н
1-44	-o-Bph	-н	-o-Bph	-н	—Ph	—н	—н	—Ph	<del>-</del> ii	—н	-н	—н
1-45	-o-Bph	-н	o-Bph	–н	—н	Ph	-н	<b>−H</b>	—Ph	-н	-н	—н
1-46	-o-Bph	-н	—o-Врh	-н	<del>-</del> н	—н	—Ph	-н	—н	—Ph	-н	—н
1-47	p-Bph	—н	—р-Врһ	-н	-н	o-Bph	-н	—н	—o-Bph	н	-н	—н
1-48	p-Bph	-н	—p-Bph	н	—н	-NPh <sub>2</sub>	—н	—н	-NPh <sub>2</sub>	-н	—н	—н
1-49	—p-Bph	—н	—p-Bph	-н	—н	−N(Taly)2	—н	н	-N(Toly)	<sub>2</sub> —н	-н	-н
1-50			—p-Bph						_		<b>—н</b> ,	—н
1-51	—p-Bph	-н	—p-Bph	-н	—н `	<b>જે</b> }~હ	<b>)</b> —н	-н -	<b>₽</b>	<del>_</del> н	—н	—н

[0053]

[0054]

【化15】

	21									22
No.		Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub> R <sub>32-37</sub> R <sub>42-47</sub>
1-52	p-Bph	— p-Bph	—р-Врһ	—p-Bph	- —н	—н	-н	-н	<del>-</del> H	—н —н —н
1-53	p-Bph	-p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—Ph	—н	-н	—Ph	-н	<del>_</del> н _н _н
1-54	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	-н	Ph	-н	-н	—Ph	-н -нн
1-55	—р-Врh	-p-Bph	p-Bph	—p-Bph	-н	—н	—Ph	—н	<b></b> H	-Ph -H -H
1-56	-m-Bph	-m-Bph	—m-Bph	-m-Biph	-н	н	-н	—н	—н	-н -н-н
1-57	-m-Bph	-m-Bph	—m-Bph	-т-Врһ	Ph	—н	-н	—Ph	—н	<del>-</del> ннн
1-58	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-н	-Ph	-н	-н	—Ph	—н· —н —н
1-59	—m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-н	. —н	—Ph	-н	—н	—Ph —H —H
1-80	-o-Bph	-o-Bph	o-Bph	—o-8ph	—н	—н	<b>—н</b>	—н	—н	—н —н—н
1-61	-o-Bph	— o-Bph	—o-Bph	-o-Bph	Ph	—н	—н	—Ph	Н	—н —н <del>—</del> н
1-62	—o-Bph	— o-Bph	o-Bph	o-Bph	-н	—Ph	-н	-н	<b>—</b> ₽h	<del></del> ннн
1-63	-o-Boh	— o-Bph	-o-Bph	-o-Bph	-н	-н	—Ph	-н	—н	Phнн
1-64	—p-8ph	—р-Врһ	—р-Врһ	—p-Врh	-н	-o-Bph	—н	-н	—а-Врһ	—н <i>—</i> н —н
1-65	—p-Bph	-p-Bph	. —р-Врһ	—р-Врһ	—н	-NPh2	н	-н	-NPh2	-н -н <i>-</i> н
1-66	p-Bph	p-Bph	p-Bph	—р-Врһ	-н-	-N(Toly)	2 —H	-н	-N(Toty	у <sub>2</sub> —н —н —н
1-67	p-Bph	—p-Bph	.—р-Врh	—p-Bph	-H-	©√©	<b>&gt;</b> —н	-н	€}~{	<b>3</b> -н -н -н
1-68	—p-Bph	p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	-н-	<del>-</del>	<b>)</b> —н	-н	-G	<b>В</b> —н —н —н
					*	* [	化 1	6]		
		Fl32_Fl33	R42 R43		—р-Тр	) <del>=</del>		_		
R-	R <sub>23</sub> Ar <sub>3</sub>		\$\_\^r	R <sub>13</sub>	-{		$\mathbb{A}$	<b>_</b>	—о-Тр	
**24	)=(	<b>&gt;=</b>	<b>)</b>	<b>⊢</b> (`''		<b>/=</b>	_	<u></u>		

[0055]

[0056]

【化17】

	23											
	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ara	Ar <sub>4</sub>	P13	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>28</sub>	Fl32-37	R <sub>42-47</sub>
1-69	р-Тр	—p-Tp	р-Тр	р-Тр	-н	—н	-н	-н	—н	-н	-н	—н
1.70	—р-Тр	-н		—н					—н		-н	н
1-71	—р-Тр	—н	—р-Тр	—н	—н	—Ph	-н	-н	—Ph	-н	—н	-н
1.72	—р-Тр	-н		—н	-н	-н	-Ph	-н	-н	-Ph	—н	—н
1-73	<b></b> o-To	-н		—н	—Ph	—н	-н	—Ph	-н	-н	-н	н
1.74				-снз								н
	-m-Tp	-m-Tp	-m-Tp	Тр	н	-н	-н	-н	-н	<del>+</del> 1	-н	—н
1-76	-m-Tp			<u>-</u> н							-н	—н
1-77				—о-Тр							—н	—н
1-78				—н								—н
1-79				ъ —н								—н
1-80				Гр — н								н
1-81				тр — Н								—н
1-82				тр —Н								н
1-83			—m,o-				—н					—н
1-83			o,m-				-н		—н			—н

[0057] [(£18] \* [0058] 20 【化19】

						*						
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ara	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R42-47
1-85	Ph	-н	-Ph	—н	—н	-н	-н	-н	—н	<u>-</u> н	R <sub>32</sub> =Ph	R <sub>43</sub> =Ph
1-86	—Ph	—н	Ph	-н	-н	—н	—н	-н	-н	—н	R <sub>32</sub> =Ph R <sub>37</sub> =Ph	R <sub>43</sub> =Ph R <sub>45</sub> =Ph
1-87	Ph	н	—Ph	— <b>н</b>	—н	-н	-н	—н	<del>_</del> H	—н	R <sub>32</sub> =Ph R <sub>36</sub> =Ph	R <sub>43</sub> =Ph R <sub>47</sub> =Ph
1-88	-Ph	Ph	—Ph	—Ph	<del>-</del> н	<b>−</b> н .	—н .	—н	—н	-н	R <sub>32</sub> =Ph	R <sub>43</sub> =Ph
1-89	Ph	—Ph	—Ph	Ph	—н	<b></b> н	н	-н	—н	—н	P <sub>32</sub> =Ph P <sub>37</sub> =Ph	R <sub>43</sub> ≃Ph R <sub>48</sub> ≕Ph
1-90	—Ph	—Ph	-Ph	—Ph	—н	-н	-н	—н	—н	—н	R <sub>32</sub> =Ph R <sub>36</sub> =Ph	R <sub>43</sub> =Ph R <sub>47</sub> =Ph
1-91	<del>, </del> Ph	<b>—н</b>	Ph	н	—н	—н	-н	-н	—н	—н	R <sub>32</sub> =Me	R <sub>43</sub> =Me
1-92	—Ph	—н	—Ph	—н	<b>—н</b>	—н	н	—н	—н	-н	R <sub>32</sub> ≖Me R <sub>37</sub> =Me	R <sub>43</sub> =Me R <sub>46</sub> =Me
1-93	一件	<del>-</del> н	→Ph	—н	—н	-н	-н	H	. —н	—н	R <sub>32</sub> ≖Me R <sub>36</sub> ≖Me	R <sub>43</sub> =Me R <sub>47</sub> =Me
1-94	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—н	-н	-н	-н	—н	-н	R <sub>32</sub> =Me	R <sub>43</sub> =Me
1-95	-Ph	—Ph	—Ph	Ph	-н	—н	—н	-н	н	—н	Fl <sub>32</sub> =Me R <sub>37</sub> =Me	R <sub>43</sub> =Me R <sub>45</sub> =Me
1-96	Ph	—Ph	—Ph	—Ph	<del>-</del> н	—н	-н	-н	—н	—н	R <sub>32</sub> =Me R <sub>36</sub> =Me	R <sub>43</sub> =Me R <sub>47</sub> =Me

[0060]

							* *	< [1Ľ	211				
	No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R42-47
-	1-97	St	-н	-St	<b>-</b> H	—н	—н	—н	-н	-н	-н	<del>-</del> н	—н
	1-98	-51	~-н	-SI	-н	—Ph	-н	—н	-Ph	—н	—н	-н	-н
	1-99	-St	—н	-sı	-н	—н	—Ph	-н	н	—Ph	—Ph	÷н	-н
	1-100	-81	-н	-St	—н	-н	-н	—Ph	-н	<del>-</del> H	—н	-н	—н
	1-101	-\$1	<b>-</b> St	-St	-St	—н	-н	-н	-н	—н	-н	-н	—н
	1-102	-sı	-sı	-sı	-St	—Ph	-н	—н	-Ph	—н	—н	<del>-</del> H	-н
	1-103	-St	-st	-st	-St	-н	-Ph	—н	—н	-Ph		-н	-н
. '	1-104	-St	-S1	-sı	-sı	н	—н	—Ph	-н	-н	—Ph	-н	—н
	1-10	5 —St	-н	-sı	-н	—н	-St	—н	н	—н	-St	-н	—н
	1-106	5 -St	-sı	-sı	-st	-н	-St	-н	,—н	St	-н	-н	-н
	1-107	-Ps	-н,	-PS	—н	-н	-н	-н	<del>- </del> H	-н	-н	—н	-н
	1-10	8 —PS	-PS	PS	-PS	-н	н	—н	-н	-н	-н	—н	-н
	1-10	g —PS	-н	-PS	-н	—н	Ph	—н	н	Ph	<u>-</u> н	н	-н
							-н	-н	-н	—н	-н	—н	-н
	1-11	1 —DS	- DS	-DS	-DS	—н	-н	-н	-н	-н	-н	-н	—н
	1-11	2 -DS	<b>-</b> н	-bs	<del>.</del> н	-н	—Ph	-н	—н	Ph	—н	<del>-</del> ,H	—н

[0061] [(£22]



30 [0062] [(£23]

-	•								20				
No.	Ar <sub>1</sub>	27 Ar <sub>2</sub>	Ars	Ar <sub>4</sub>	Ria	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	P <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>	
	-{s}	-н	-{s}	—н	н	-н	<b>—н</b>	-н	—н	<b>-н</b>	—н	-н	
	-\$1		-\$	—Ph	Н	-н	— <b>н</b>	<b></b> H	—н	—н	—н	—н	
1-115	-ST	-сн <sub>з</sub>	-90	—сн <sub>з</sub>	-н	—н	—н	—н	-н	-н	<b>—н</b>	—н	
	-\$1	—p-Bph	-50	p-Bph	—н	-н	<u>-</u> н	—н	-н	—н	н	<b></b> H	
	-\$	—р-Врh	-00°	—р-Врһ	—н	—н	<b>-н</b>	. —н	—н	—н	-н	—н	-
1-118	-STS	>н	-(1 <sub>5</sub> )	-н	-н	-н	—н	—н	—н	-н	—н	<b></b> H	
1-119		<b></b> н	-\$1 -	—н	-н	-Ph	—н	-н	Ph	—н	н	—н	
1-120	-80	-SC		-2C	) -н	—н	—н	<b>-</b> H	—н	—н	—н	-н	

[0063] [(£24]



\* [0064] [(£25]

20

				*								
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	- Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
1-121	-CL CH3	—H	-√ <sub>S</sub> \ <sub>CH3</sub>	—н	—н	-н	— <u>—</u> н	-н-	—н	-н	—н	<b>—</b> H-
1-122	-CH3	Ph	-CH3	Ph	<b>-н</b>	н	н	<del></del> Н	<b>-н</b>	—н	~н	<del>H</del>
1-123	-(S) CHa	<b>-</b> сн <sub>3</sub>	. −⟨St <sub>CH3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-н	—н	н	-н	—н	<b>-</b> н	—н	—н
1-124	-(S)_CH3	—p-Врh	-{SL <sub>CH3</sub>	—p-Врh	Н	—н	н	<del>-</del> H	—н	-H	-н	_—н
1-125	-ST CHS	—p-Bph	-CL CH3	—p-Bph	—н	<del>_</del> H	н	н	—н	н	н	—н
1-126		—Н	-STS-CH	н ∙	—н	-н	-н	<del>-</del> H	—н	, —н	<del></del> н :	—н
1-127	-St CHs	H	-SLCH3	••	н	—Ph	<del>-</del> H	—н	Ph	-н	—н	—н
1-128	-CH3	-(S) CH3	-Ch <sub>3</sub>		-н	-н	—н	—н	-н	н	<b>—н</b>	—н

[0065] [化26]

.

\* [0066] [(£27]

上記式中のAr<sub>1</sub>~Ar<sub>8</sub>(次頁に続く)

	-	10000		( ) ( ) ( )	• •			
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	Ar <sub>6</sub>	Ar <sub>7</sub>	Arg
2-1	Ph	-н	Ph	—н	—Ph	—н	Ph	—н
2-2	—Ph	Ph	Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	Ph
2-3	Ph	—н	—Ph	—н	—Ph	н	-Ph	—н
2-4	—Ph	-Ph	-Ph	—Ph	-Ph	Ph	—Ph	<b>−</b> Ph .
2-5	Ph	н	-Ph	<del></del> H ·	Ph	—н	Ph	—н
2-6	—Ph	-н	—Ph	H	—Ph	<del>-</del> н	Ph	—н
2-7	Ph	-н	—Ph	-н	—Ph	—н	-Ph	—н
2-8	—Ph	-сн <sub>3</sub>	—Ph	сн <sub>з</sub>	—Ph	-CH <sub>3</sub>	-Ph	−сн₃
2-9	-Ph	<del></del> н	—Ph	-н	Ph	н	—Ph	—н
2-10	Ph	—н	—Ph	-н	Ph	<del></del> H	-Ph	—н
2-11	—p-Bph	н	—p-Bph	—н	-p-Bph	—н	—p-8ph	н
2-12	-p-Bph	—р-Врh	p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	-p-Bph	—р-Врһ	—р-Врһ
2-13	p-Bph	н	p-Bph	—н	—p-Bph	—н	p-Bph	—н
2-14	—p-Bph	—p-Bph	p-Bph	p-Bph	p-Bph	—р-Врһ	—р-Врһ	p-Bph
2-15	p-Bph	—н	p-Bph	<b>—н</b>	 p-Врћ	—н	—p-Врһ	-н
2-16	—p-8ph	—н	p-Bph	н	—p-Bph	н	—p-Bph	—н
2-17	-m-Bph	н	m-Bph	н	-m-8ph	Н	—т-Врһ	—н
2-17	-m-8ph	m-Bph	- m-Bph	m-Bph	m-Bph	-m-Bph	— m-8ph	-m-Bph
		•	-o-Bph	-н	-o-Bph	—н	—o-Bph	-н
2-19	o-Bph	—н	•				•	-o-Bph
2-20	— o-Bph	-o-Bph	—o-Bph	-o-Bph	o- <del>B</del> ph	o-Bph	o-Bph	-0-bbn

[0067] [(28] [0068] [(£29]

### 上記式中のR<sub>19</sub>~R<sub>15</sub>等(前頁の続き)

Na.	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	H <sub>25</sub>	H <sub>33</sub>	R <sub>34</sub>	R <sub>35</sub>	R <sub>43</sub>	R <sub>44</sub>	R45	R55-57	Res-67
2-1	-н	—н	-н	-н	н	н	—н	-н	—н	-н	н	—н	—н	—н
2-2	—н	—н	-н	-н	-н	-н	н	-н	-н	-н	-н	-н	н	—н
2-3	-н	—Ph	—н	-н	—Ph	-н	—H	Ph	<b>-</b> x	-н	-Ph	-#	—н	—н
2-4	-н	-Ph	-н	-н	—Ph	-н	-н	Ph	—н	-н	-Ph	-н	—н	—н
2-5	—н	—н	Ph	-н	н	-Ph	-н	—н	—Ph	—н	-н	Ph	—н	—н
2-6	-Ph	—н	-н	—Ph	-н	-н	Ph	-н	-н	—Ph	-н	—н	—н	-н
2-7	-н	—СH <sub>3</sub>	-н	-н	сн₃	-н	-н	−сн₃	-н	~н	<b>−</b> СН <sub>3</sub>	-н	—н	—н
2-8	н	—н	—н	-н	—н	-н	-н	—н	-н	-н	—н	-н	—н	—н
2-9	—н	—н	—н	-н	—н	-н	—н	_н	-н	—н	—н	-н	R <sub>66</sub> =Ph	R <sub>66</sub> ≖Ph
2-10	-н	—н	-н	—н	—н	-н	-н	—н	—н	—н	—н	—н	R <sub>56</sub> =Ph R <sub>67</sub> =Ph	R <sub>66</sub> ≃Ph R <sub>67</sub> =Ph
2-11	-н	<del>_</del> н	-н	_н	—н	-н	-н	—н	—н	-н	⊣н	н	—н	-н
2-12	-н	—н	—н	—н	-н	—н	-н	н	—н	_н	—н	-н	—н	-н
2-13	-н	—Ph	-н	-н	Ph	-н	-н	Ph	-н	н	—Ph	н	—н	—н
2-14	-н	-Ph	—Н	-н	—Ph	н	—н	—Ph	—н	—н	Ph	-н		~н
2-15	-н	н	—Ph	—н	-н	—Ph	-н	—н	-Ph	—н	-н	—Ph	-н	-н
2-16	Ph	—н	—н	—Ph	—н	-н	—Ph	~н	-н	Ph	<b>—</b> H	-н	н	~н
2-17	-н	—н	—н	—н	-н	-н	—н	<del></del> H	—н	—н	-н	-н	—н	-н
2-18	—н	—н	н	—н	—н	-н	—н	—н	- —н	-н	<del>-</del> н	-н	<del>-</del> H	—н
2-19	н	—н											н	—н
		—н												—н

[0069]

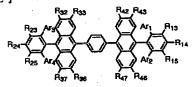
[0070]

## ※ ※ [化31]

100	1 0 1													-								
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar4	Ar <sub>5</sub>	.Ar <sub>B</sub>	Ar <sub>7</sub>	Arg	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>33</sub>	F134	R <sub>35</sub>	R <sub>43</sub>	R <sub>44</sub>	R <sub>45</sub>	R <sub>56-57</sub>	R <sub>66-67</sub>
2-21	—St	~н	—Şt	-+1	-St	—н	-sı	-н	—н	н	—н	-н	н	—н	—н	н	-н	-н	—н	—н	—н	—н
2-22	St	-sı	-St	-St	-St	-St	-St	-St	-н	-н	-н	-н	-н	н	—н	—н	—н	-н ⋅	н	—н	—н	-н
2-23	-sı	—н	- <b>S</b> t	-н	-St	-н	-St	н	-н	Ph	—н	—н	—Ph	-н	—н	—Ph	<del></del> H	-н -	Ph	—н	—н	—н
2-24	-st	-sı	-St	-st	-sı	-St	-St	-st	—н	—Ph	-н	<del>-</del> Ĥ	Ph	—н	—н	Ph	—н	-н -	-Ph	-н	—н	<b></b> H
2-25	-PS	—н	-PS	-н	-PS	-н	-PS	-н	н	н	—н	—н	—н	-н	_н	-н	—н	-н	—н	—н	—н	-н
2-26	-PS	-PS	-PS	-н	-PS	-PS	-PS	-PS	-Ph	-н	-н	-н	-н	-н	-н	—н	-н	—н	-н	—н	—н	н
2-27	DS	н	-os	—н	-DS	н	-DS	н	-н	-н	—н	—н	-н	-н	-н	—н	—н	-н	-н	—н	-н	—н
2-28	-ps	—ps	-ps	-ps	-os	-08	-DS	-ps	-н	-н	—н	~-н	-н	—н	—н	-н	—н	-н	~н	—н	-н	н
2-29	-St	—St	St	<b>–</b> 8ŧ	St	-St	-St	-St	-н	—н	—н	—н	-н	-н	-н	—н	н	-н	-н	-н	R <sub>56</sub> =Ph	Res=Ph
2-30																					A <sub>56</sub> =Ph	

33

[0071] [化32] \* [0072] [化33]



							*						
_	No.	Ar <sub>1</sub>	Arg	Ara	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
	3-1	—Ph	—н	—Ph	—н	—н	—н	—н	—н	—н	—н	—н	—н
	3-2	—Ph	—н	—Ph	—н	—Ph	—н	~н	-Ph	—н	—н	—н	—н
	3-3	—Ph	-н	Ph	—н	-н	Ph	-н	—н	—Ph	—н	—н	—н
	3-4	—Ph	н	<b>Ph</b> .	н	-н	-н	Ph	—н	н	—Ph	—н	—н
	3-5	Ph	-н	—Ph	—н	-Me	-н	—н	-Me	—н	—н	—н	—н
	3-6	—Ph	-н	-Ph	—н	-н	-Me	н	н	-Me	н	—н	—н
	3-7	-Ph	-н	—Ph	-н	-н	н	-Me	—н	—н	-Me	—н	—н
	3-8	—Ph	—н	—Ph	-н	-н	-OPh	—н	—н	-OPh	—н	—н	—н .
	3-9	—Ph	—н	—Ph	-н	-н	-OMe	—н	-н	—ОМе	—н	-н	—н
	3-10	—Ph	—н	Ph	—н	–н -	ОТ-Ме	-н -	<b>⟨</b> ]>+	Λ <del>ο</del> —Η	—н	—н	—н
	3-11	—Ph	-н	,—Ph	-н	-н	p-Bph	-н	-н	—p-Bph	−H	—н	—н
	3-12	Ph	-н	—Ph	—н	-н	-m-Bph	н	н	-m-Bph	-H	—н	—н
	3-13	Ph	-н	—Ph	-н	-н	—o-Bph	—н	-н	-o-Bph		—н	—н
	3-14	—Ph	-н	Ph	н	-н	-NPh2	-н	-н	-NPh2	-+	—н	—н
	3-15	—Ph	-н	Ph	-н	-н	-N(Toly)	)2 —H	<del>_</del> н	-N(Toly	n2 —+	iH	—н
		Ph	-н	Ph	_н	-н	<b>-©~</b> √	<b>∂</b> →H	<b>-</b> н	-@-v4	<sub>3</sub> ) –⊦	∙` —н	—н
	3-17	—Ph	—н	Ph	н	н		<b>⋽</b> > →⊦	. —н	-034	<b>⋑</b> –⊦	н —н	-н

[0073] [(134]

[0074] [化35]

40

	35											36
No.	Ar <sub>1</sub>	. Ara	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R42-47
4-1	—Ph	н	-Ph	—н	—н	—н	—н	-н	—н	-н	-н	—н
4-2	Ph	—н	Ph	-н	—Ph	-н	-н	—Ph	—н	<u>-</u> н	-н	-н
4-3	—Ph	—н	-Ph	-н	—н	—Ph	—н	<b></b> H	- Ph	-н	—н	<del>-</del> H
4-4	—Ph	.—н	—Ph	-н	-н	<del>-</del> н	Ph	-н	. —н	—Ph	-н	_н
4-5	—Ph	-н	Ph	н	—Ме	<b>—н</b>	н	-Me	—н	<del></del> н	-н	<b>-</b> H
4-6	—Ph	—н	-Ph	-н	—н	<b>—М</b> в	—н	-н	—Me	—н	. <del>–</del> н	н
4-7	Ph	н	—Ph	-н	н	—н	— Ме	н	—н	-Me	—н	—н
4-8	—Ph	-н	Ph	-н	-н	-OPh	-н	-н	-OPh	-н	—н	н
4-9	—Ph	<del>,</del> -н	-Ph	<del>-</del> H	—н	-ОМо	—н	—н	-OMe	-н	—н	—н
4-10	—Ph	-н	Ph	-н	—н-		н	—н	{}-Ме	н	—н	-н .
4-11	Ph	—н	Ph	-н	<del>-</del> н	p-Bph	—н	—н	—р-Врh	н	—н	н
4-12	-Ph	—н	Ph	-н	—н	-m-Bph	—н	-н	-m-Bph	-н	—н-	—н
4-13	—₽h	—н	—Ph	-н	—н	-o-Bph	-н	-н	o-Boh	-H	—н	—н
4-14	—Ph	-н	—Ph	—н	—н	-NPh <sub>2</sub>	-н	-н	-NPh <sub>2</sub>	-	-н	—н
4-15	<b>—₽</b> h	—н	—Ph	—н	—н	—N(Taly);	. –н	-н	-N(Toly)	<sub>2</sub> —	н.	—н
4-16	-Ph	-н	—Ph	-н	_н	-©-ve	»н	н	<b>₽</b>	<b>}</b> −+	-н	—н
			Dh	H		-@- <sub>-</sub>						—н

[0075] [化36]

[0076] [(£37]

	37											38
No.		Ar <sub>2</sub>	Агэ	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R42-47
5-1	—Ph	—н	—Ph	—н	-н	-н	<del>-</del> H	—н	-н	—н	-н	—н
5-2	-Ph	—н	—Ph	-н	-Ph	н	—н	Ph	—н	<del>-</del> н.	<u>-</u> н	—н
5-3	—Ph	-н	—Ph	-н	<u>-</u> н	—Ph	<del>-</del> н	—н	—Ph	—н	-н	-н
5-4	—Ph	-н	-Ph	-н	-н	н	<b>—</b> Рh	<del>H</del>	—н	—Ph	<del></del> H	-н
5-5	—Ph	—н	—Ph	—н	-Me	—н	<del>-</del> н	Me	н	—н	—н	-н
5-6	—Ph	-н	Ph	—н	—н	—Me	—н	—н	—Me	-н	—н	-н
5-7	—Ph	—н	—Ph	-н	-н	—н	-Me	-н	<b>–</b> н	Me	~н	—н
5-8	—Ph	-н	-Ph	-н	н	-OPh	—н	—н	-OPh		· —н	-н
5-9	—Ph	н	—Ph	—н	-н	-OMe	—н	—н	-OMe	-	-н	—н
5-10	-Ph	-н	—Ph	-н	-н -	-C)-Me	—н	—н—	<b>√</b> }-Me	<b>-</b> ;	<b>и ~</b> н	—н
5-11	—Ph	-н	-Ph	-н	—н	—р-Врһ	-н	—н	—р-Врһ	-1	:н	-н
5-12	-Ph	-н	:Ph	-н	-н	-m-Bph	—н	-4	—m-Bph		н —н	-н
5-13	-Ph	<b>–н</b>	-Ph	—н	-н	-o-Bph	—н	-н	o-Bph	-1	н —н	—н
5-14	-Ph	-н	-Ph	-н	—н	-NPh2	—н	<del>-</del> н	-NPh2		-н	—н
5-15	-Ph	-н	-Ph	-н.	—н	-N(Toly)	2 —H	-н	-N(Toly	)2 -1	- –н	—н
5-16	-Ph	—н	-Ph	-н	-н	-@-~@	<b>&gt;</b> -	н —н	-@~~	ا— (ق	- н	—н
5-17	—Ph	-н	—Ph	—н	—н	~@~	<b>3</b> -	н —н	-03-6	<u>-</u> 1	нн	—н

[0077] [(138]

[0078] [化39]

	39											40
No.	Ar <sub>1</sub>	Arg	Arg	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	Res	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	P42-47
6-1	—Ph	—н	—Ph	—н	—н	—н	н	-н	~н	-н	-н	-н
6-2	—Ph	—н	—Ph	—н	—Ph	—н	—н	—Ph	—н	—н	-н	-н
6-3	—Ph	—н	—Ph	—н	-н	<del>-Ph</del>	—н	<b>-</b> H	—Ph	—н	-н	-н
<b>6-4</b> .	—Ph	-н	—Ph	—н	—н	—н	—Ph	—н	—н	—Ph	—н	-н
6-5	Ph	<b>–</b> і́н	Ph	—н	Me	- —н	-н	Me	-н	-н	-н	-н
6-6	Ph	-н	—Ph	-н	-н	-Me	—н	н	—Me	н	-н	<b>−н</b>
6-7	—Ph	<del>-</del> H	Ph	-н	-н	—н	-Ме	н	—н	Me	-н	—н
6-8	Ph	-н	—Ph	-н	-н	-OPh	—н	—н	-OPh	-н	—н	-н
6-9	→Ph	. —н	—Ph	—н	—н	-OMe	н	-,н	-OMe	-н	-н	<b>-</b> H
6-10	—Ph	—н	—Ph	н	—н -	-C>-Me	• —н	—н .	-{-}Ме	—н	—н	-н
6-11	—Ph	-н	Ph	-н	-н	p-Bph	—н	-н	—р-Врһ	н	—н	÷H
6-12	—Ph	-н	Ph	-н	. —н	m-Bph	—н	~н	-m-Bph	—н	<del>-</del> н	<b></b> H
6-13	—Ph	-н	—Ph	—н	—н	-o-Bph	—н	<b>⊸н</b>	-o-Bph	—н	<del>_</del> н	—н
6-14	—Ph	—н	Ph	—н	—н	-NPh <sub>2</sub>	н	- <u>H</u>	-NPh2	—н	—н	-н ,
6-15	—Ph	—н	—Ph	—н	-н	—N(Toly)	) <sub>2</sub> —H	—н	—N(Toly)₂	+	н	н
8-16	—Ph	—н		—н					-@~v@			-н
6-17	—Ph	н	-Ph	—н	<b>—</b> н	TO S	<b>②</b> −н	~н	-@ <sub>}-©</sub>	<b>&gt;</b> ⊢	ı —н	-н

[0079] 本発明のフェニルアントラセン誘導体の合 成法については、特開平8-12600号公報等を参照 することができる。

【0080】これらの化合物は1種のみを用いても2種 以上を併用してもよい。

【0081】フェニルアントラセン誘導体を青色発光化 合物として用い、青色発光層とする場合の膜厚としては  $1\sim500$  nmが好ましく、より好ましくは $10\sim200$ nmである。

【0082】とのような発光層には青色発光を保持する ことが可能な形でドーパントをドープしてもよい。この ようなドーパントとしてはWO98/08360号や特開平8-2396 55号に開示のスチリル系アミン化合物等が挙げられる。 トの使用量は発光層中において0.1~20質量%であ ることが好ましい。ドーパントの使用により発光効率や 素子の安定性が向上する。

【0083】また、青色発光層は発光層に隣接して設け られる電子輸送層、ホール輸送層に用いられる電子注入 輸送性化合物あるいはホール注入輸送性化合物をホスト 材料として含有するものであってもよい。具体的には電 子輸送層に用いたフェニルアントラセン誘導体をホスト 材料として用いることなどが挙げられる。フェニルアン トラセン誘導体は青色発光特性を有するものであるの

で、それ自体で青色発光させることが可能であるが、ホ スト材料が青色発光特性を有しないものであるときは、 ドーパントを使用することにより発光特性をかえ、青色 発光するようにしてもよい。このようなドーパントして は前述のスチリル系アミン化合物などが挙げられる。

【0084】こうした構成では、ホスト材料となる化合 物を含有する電子輸送層あるいはホール輸送層と発光層 との膜厚比を、発光層厚/電子輸送層あるいはホール輸 送層厚が1/100~100/1となるようにすること が好ましい。

[0085]また、青色発光層は電子注入輸送性化合物 とホール注入輸送性化合物との混合層であってもよく、 このような態様は好ましい。なかでも、電子注入輸送性 スチリル系アミン化合物については後述する。ドーパン 40 化合物、ホール注入輸送性化合物のいずれか一方の化合 物は、発光層に隣接して設けられる電子輸送層、ホール 輸送層に用いられた化合物と同じものが好ましい。特に 好ましくは、発光層に隣接して電子輸送層とホール輸送 層とを設け、これらの層中の電子注入輸送性化合物とホ ール注入輸送性化合物とを用い、これらの化合物の混合 物とすることである。

> 【0086】具体的には、電子輸送層中のフェニルアン トラセン誘導体を電子注入輸送性化合物として用い、ホ ール輸送層中の芳香族三級アミンをホール注入輸送性化 合物として用いることが好ましい。フェニルアントラセ

ン誘導体として前述の式(A)の化合物が好ましい。芳香族三級アミンとしては、式(1)で表されるテトラアリールベンジジン誘導体が好ましい。 \*

\* [0087] [(1240]

$$(R_3)_{r5}$$
 $(R_6)_{r6}$ 
 $(R_6)_{r6}$ 
 $(R_1)_{r1}$ 
 $(R_2)_{r2}$ 
 $(R_2)_{r2}$ 

[0088]式(1)について説明すると、 $R_1 \sim R_1$ は、それぞれアリール基、アルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基またはハロゲン基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。 $r_1 \sim r_1$ は、それぞれ0~5の整数であり、 $r_1 \sim r_4$ がそれぞれ2以上の整数であるとき、隣接する $R_1$ 同士、 $R_2$ 同士、 $R_3$ 同士、 $R_4$ 同士は、それぞれ互いに結合して環を形成してもよい。 $R_1$  および $R_2$  は、それぞれアルキル基、アルコキシ基、アミノ基またはハロゲン基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。 $r_3$ および $r_4$ 0~4の整数である。

[0089] R. ~ R. で表されるアリール基としては、単環もしくは多環のものであってよく、縮合環や環集合も含まれる。総炭素数は6~20のものが好ましく、置換基を有していてもよい。この場合の置換基としては、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アミノ基、ハロゲン原子等が挙げられる。具体的には、フェニル基、(o-, m-, p-) トリル基、ビレニル基、ベリレニル基、コロネニル基、ナフチル基、アントリル基、ピフェニルアントリル基、トリルアントリル基等が挙げられ、特にフェニル基が好ましく、アリール基、特にフェニル基の結合位置は3位(Nの結合位置に対してメタ位)または4位(Nの結合位置に対してバラ位)であることが好ましい。

【0090】R、~R、で表されるアルキル基としては、直鎖状でも分岐を有するものであってもよく、炭素数1~10のものが好ましく、置換基を有していてもよい。この場合の置換基としてはアリール基と同様のものが挙げられる。具体的には、メチル基、エチル基、(n 40 -, i -) プロビル基、(n -, i -, s -, t -) ブチル基等が挙げられる。

【0091】R、~R、で表されるアルコキシ基としては、アルキル部分の炭素数1~6のものが好ましく、具体的にはメトキシ基、エトキシ基、t-ブトキシ基等が挙げられる。アルコキシ基はさらに置換されていてもよい

[0092] R、 $\sim$ R、で表されるアリールオキシ基としては、フェノキシ基、4-メチルフェノキシ基、4-(t-ブチル)フェノキシ基等が挙げられる。

【0093】R、~R、で表されるハロゲン基としては、塩素原子、臭素原子等が挙げられる。

42

[0094]式 (1) のなかでも、好ましい態様としては、 $r_1 \sim r_4$ のいずれかが2以上の整数であり、 $R_1$ 同士、 $R_2$ 同士、 $R_3$ 同士もよび $R_4$ 同士のなかのいずれかが互いに結合して環(例えばベンゼン環)を形成する場合が挙げられる。

[0095] また、別の好ましい態様としては $R_1 \sim R_2$  のうちの少なくとも 1 個はアリール基である場合である。 すなわち、 $r_1 \sim r_2$  は同時に 0 になることはない。従って、 $r_1 + r_2 + r_3 + r_4$  は 1 以上の整数であり、少なくとも 1 つのアリール基が存在する条件を満たす数である。

[0096] R, ~R, のうちの少なくとも1個はアリ ール基であるとき、特にR、~R.として1分子中にア リール基が2~4個存在することが好ましく、 r1~r. の中の2~4個が1以上の整数であることが好ましい。 特に、アリール基は分子中に総計で2~4個存在し、好 ましくは $r_1 \sim r_4$ の中の2~4個が1であり、さらに好 ましくは $r_1 \sim r_4$ が1であり、含まれる $R_1 \sim R_4$ のす べてがアリール基であることも好ましい。すなわち、分 子中のR、~R、が置換していてもよい4個のベンゼン 環には総計で2~4個のアリール基が存在し、2~4個 のアリール基は4個のベンゼン環の中で同一のものに結 合していても、異なるものに結合していてもよいが、特 に2~4個のアリール基がそれぞれ異なるベンゼン環に 結合していることが好ましい。そして、さらに少なくと も2個のアリール基がNの結合位置に対してバラ位また はメタ位に結合していることがより好ましい。また、こ の際アリール基としては少なくとも1個がフェニル基で あることが好ましく、すなわちアリール基とベンゼン環 が一緒になってN原子に対し4-または3-ピフェニリ ル基を形成することが好ましい。特に2~4個が4-ま たは3-ビフェニリル基であることが好ましい。4-ま たは3-ビフェニリル基は一方のみでも両者が混在して いてもよい。また、フェニル基以外のアリール基として は、特に(1-, 2-)ナフチル基、(1-, 2-, 9 -) アントリル基、ビレニル基、ペリレニル基、コロネ ニル基などが好ましく、フェニル基以外のアリール基も 50 Nの結合位置に対しバラ位またはメタ位に結合すること

44

が好ましい。これらのアリール基もフェニル基と混在していてもよい。

[0097]式 (1) において、R、、R。で表されるアルキル基、アルコキシ基、ハロゲン原子としては、R、  $\sim$ R、のところで挙げたものと同様のものが挙げられる

【0098】R,、R,で表されるアミノ基としては、 無置換でも置換基を有するものであってもよいが、置換 基を有するものが好ましく、具体的にはジメチルアミノ 基、ジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリル 10 アミノ基、ジビフェニリルアミノ基、N-フェニルーN ートリルアミノ基、N-フェニルーN-ナフチルアミノ 基、N-フェニルーN-ビフェニリルアミノ基、N-フェニルーN-\*

\* ピレニルアミノ基、ジナフチルアミノ基、ジアントリル アミノ基、ジピレニルアミノ基等が挙げられる。

【0099】r,、r。は、ともに0であることが好ましく、2つのアリールアミノ基を連結するピフェニレン基は無置換のものが好ましい。

【0100】なお、 $r_1 \sim r_4$ が2以上の整数のとき、各  $R_1 \sim R_4$  同士は各々同一でも異なるものであってもよい。また、 $r_3$ 、 $r_4$ が2以上の整数のとき、 $R_5$  同士、 $R_5$ 同士は同一でも異なるものであってもよい。

0 【0101】これらの化合物の中でも、下記式(1-1)で表される化合物が好ましい。

[0102]

【化41】

$$(R_{\theta})_{r\theta} = \begin{vmatrix} A_{13} & A_{14} & A_{10} \\ A_{10} & A_{10} & A_{10} \\ A_{11} & A_{12} & A_{12} \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} A_{14} & A_{14} & A_{10} \\ A_{10} & A_{10} & A_{10} \\ A_{12} & A_{12} & A_{12} \end{vmatrix}$$

【0103】式(1-1)について説明すると、A<sub>1</sub>、~A<sub>1</sub>、は、それぞれNの結合位置に対してパラ位(4位)またはメタ位(3位)に結合するフェニル基または水素原子を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。ただし、A<sub>1</sub>、~A<sub>1</sub>、の2個以上はフェニル基であることが好ましい。これらのフェニル基はさらに置換基を有していてもよく、この場合の置換基としてはR<sub>1</sub> ~R<sub>30</sub>、で表されるアリール基のところで挙げた置換基と同様のものを挙げることができる。

【0104】R,  $\sim$ R<sub>1</sub>。は、それぞれアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基またはハロゲン基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。これらの具体例としては式(1)のR<sub>1</sub>  $\sim$ R<sub>4</sub> のところで挙げたものと同様のものを挙げることができる。【0105】r, $\sim$ r<sub>1</sub>。は、それぞれ $0\sim$ 4の整数であり、r, $\sim$ r<sub>1</sub>。は0であることが好ましい。

 $\{0\ 1\ 0\ 6\}$  なお、r,  $\sim r$ 10 が各々2以上の整数であるとき、各R70 へR10 同士は同一でも異なるものであってもよい。

 $[0\ 1\ 0\ 7]$ また、式 (1-1) において、R, 、 R, 、 r,およびr。は式 (1) のものと同義であり、r。r。= r。= 0 であることが好ましい。

[0108]式(1)で表される化合物の具体例を以下に示すが、本発明はこれに限定されるものではない。具体例は式(I)、(II)の表示に従って示しており、R、令においてすべてHのときはHで示し、置換基が存在するときは置換基のみを示している。このほか、実施例で使用のN、N ージフェニルベンジジンが例示できる。

[0109]

【化42】

[0110]

[{k43]

4	7
7	•

					<b>(</b> L43				
R 中 8	Ľ合物 R <sub>101</sub> ∼R <sub>104</sub>	R <sub>105</sub> ~R <sub>109</sub>	R110~R118	$R_{114}{\sim}R_{118}$	R119~R122	R <sub>123</sub> ~R <sub>127</sub>	R <sub>128</sub> ~R <sub>181</sub>	R <sub>132</sub> ~R <sub>136</sub>	R137~R144
Ξ	щ	н	Щ	Н	Н	H	Ħ	н	H
I-2	н	R104=CH3	н	$R_{11}$ = $CH_3$	н	R <sub>126</sub> =CH <sub>3</sub>	H	R <sub>186</sub> =CH <sub>3</sub>	Ħ
F-I	H	R107=CH3	ш	R16=CH3	ж	R <sub>125</sub> =CH <sub>3</sub>	H	R <sub>134</sub> =CH <sub>3</sub>	Ħ
J-4	н	$R_{107}\!\!=\!\!Ph$	H	$R_{116}\text{=}Ph$	н	$\rm R_{125} \dot{=} Ph$	Ħ	$R_{134}=Ph$	Ħ
I-5	H	R <sub>107</sub> =OPh	н	$R_{116}$ =OPh	æ	R <sub>126</sub> =0Ph	Н	R <sub>184</sub> =OPh	Ħ
9-1	<b>#</b> ,	$R_{107}=N(C_2H_b)_2$	Ħ	R116=N(C2H5)2	<b>H</b> ,	$R_{126} = N(C_2 H_6)_2$	H	R <sub>184</sub> =N(C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> ) <sub>2</sub>	Ħ
1-7	R <sub>102</sub> =Ph	H	$R_{111}$ =Ph	н	$R_{120}$ =Ph	н	$R_{129}$ =Ph	н	田.
<b>&amp;</b>	R <sub>102</sub> =OPh	Н	$R_{111}$ =OPh	н	R <sub>120</sub> =OPh	н	$R_{129}=OPh$	Ħ	ш
6·I	Ħ	<b>H</b>	Н	н	<b>#</b>	Ħ	H	н	$R_{187} \!\!=\! R_{142} \!\!=\!\! CH_8$
1-10	#	н	Н	н	н	Ħ	н	Ħ	R140=R148=CH8
1-11	$R_{102}=Ph$	$R_{107}\!\!=\!\!Ph$	$R_{111}$ =Ph	R <sub>116</sub> =Ph	R <sub>110</sub> =Ph	$R_{12\delta}{=}Ph$	$R_{129}=Ph$	$R_{134} = Ph$	н
1-12	Ħ	$R_{106}\!=\!CH_3$	H	R <sub>116</sub> =CH <sub>3</sub>	H	$R_{126}$ =CH $_3$	н	R <sub>134</sub> =CH <sub>3</sub>	Ħ
I-13	Ħ	R <sub>106</sub> =Ph	н	R <sub>117</sub> =Ph	H	R <sub>126</sub> =Ph	H	$R_{136}$ =Ph	н

[0111]

[0112]

*	*	[1t	45	1
---	---	-----	----	---

化合物 No.	Ar 104	Ar 105	R <sup>201</sup> ~R <sup>204</sup>	R <sup>201</sup> ~R <sup>204</sup> R <sup>205</sup> ~R <sup>208</sup> R <sup>209</sup> ~R <sup>213</sup> R <sup>214</sup> ~R <sup>218</sup> R <sup>137</sup> ~R <sup>144</sup>	R <sup>209</sup> ~R <sup>213</sup>	R <sup>214</sup> ~R <sup>218</sup>	R137~R144
105-1	-(Ph)2	-{]→N(Ph) <sub>2</sub>	Ξ.	Ŧ	I	I	Ŧ
105-2			I	x	æ	. <b>I</b>	I
105-3		# Q Q	r	I	I	I	I
105-4	~(\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\	-(-(-(-(-(-(-(-(-(-(-(-(-(-(-(-(-(-(-(	I.	I	Ī	I.	I
106-5			I	<b>x</b> .	I	<b>I</b> .	Ξ
105-6	Ph Ph Ph Ch-CH <sub>3</sub>	Ph CH <sub>3</sub>	I	I	r	I	r
105-7		- N-(-C)-CH <sub>3</sub> )2	I	. <b>=</b>	I	I	I
105-8	-O-N(Q <sub>CH3</sub> ) <sub>2</sub>	-C-N (C)	Ξ	Ŧ	I	±	<b>=</b> .

[0113]

【化46】

•	

<b>51</b>		• •		(27)		•
	R <sup>137</sup> ~R <sup>144</sup>	I	<u>.</u>	r	I	<b>±</b>
	$R^{214}$ $\sim R^{218}$	I	I	I	Ŧ,	I
	R <sup>201</sup> ~R <sup>204</sup> R <sup>205</sup> ~R <sup>208</sup> R <sup>209</sup> ~R <sup>213</sup> R <sup>214</sup> ~R <sup>218</sup> R <sup>137</sup> ~R <sup>144</sup>	Ι	• <b>.</b>	ı.	I	±
	R <sup>205</sup> ~R <sup>208</sup>	Ι	<b>±</b>	I	 I	Ŧ
	R <sup>201</sup> ~R <sup>204</sup>	Ξ	<b>±</b>	r	·	Í
	Ar 105	# N			€ <u>\$</u>	
	Ar 104	P. N. O. P.		€\$3	\$ <u></u>	
	化合物 No.	105-9	105-10	106-11	105-12	105-13

[0114]

[1647]

53	•			,	,	ı	54
R <sup>137</sup> ~R <sup>144</sup>	I	R¹³7≖R¹⁴2≝CH₃	R <sup>137</sup> =R <sup>142</sup> =CH <sub>3</sub>	I	I	Ι	
R214~R218	I	I	I	R <sup>216</sup> =Ph	R²¹7≠Ph	R <sup>218</sup> =Ph	
R <sup>209</sup> ~R <sup>213</sup>	<b>=</b> ,	I	I .	R <sup>211</sup> =Ph	R <sup>212</sup> ≖Ph	R <sup>213</sup> =Ph	
R <sup>201</sup> ~R <sup>204</sup> R <sup>205</sup> ~R <sup>208</sup> R <sup>209</sup> ~R <sup>213</sup> R <sup>214</sup> ~R <sup>218</sup> R <sup>137</sup> ~R <sup>144</sup>	I	<b>.</b>	I	ı. I	±	<b>I</b>	
R <sup>201</sup> ~R <sup>204</sup>	<b>,z</b> .	I	<b>=</b>	<b>I</b>	I	I	
Ar 105			O-in CO-			(CO)	
Ar 104	Q P		~ (CH <sub>3</sub> )		(Q) - Q		
化合物 No.	105-14	105-15	105-16	105-17	105-18	105-19	

【0115】式(1)で表されるテトラアリールベンジジン誘導体は1種のみ用いても2種以上併用してもよい

[0116] 混合層における電子注入輸送性化合物とホール注入輸送性化合物との混合比(体積比)は電子注入 40輸送性化合物/ホール注入輸送性化合物が10/90~90/10であることが好ましく、さらに好ましくは20/80~80~20である。

【0117】このような混合層において、電子輸送性化合物に前述のフェニルアントラセン誘導体を用いる場合は、これ自身を青色発光化合物とすることができる。このようにフェニルアントラセン誘導体を青色発光化合物とし、テトラアリールベンジジン誘導体と混合して青色発光層とする場合、フェニルアントラセン誘導体/テト

ラアリールベンジジン誘導体 (体積比) は $95/5\sim3$  0/70が好ましく、 $90/10\sim40/60$ がより好ましい。

【0118】また、上述のような混合層において、さらにドーパントをドープしてもよく、ドーパントのドープは発光効率の向上および素子の安定性の点で好ましい。ドーパントの使用量は混合層中において0.1~20質量%であることが好ましい。

[0119] とのようなドーパントとしては前述のスチリル系アミン化合物が好ましく用いられる。特に式(S) で表される化合物が好ましい。

[0120]

【化48】

$$(R_{64})_{v_1}$$

$$(R_{64})_{v_1}$$

$$(R_{67})_{v_4}$$

$$(R_{62})_{v_5}$$

$$(R_{62})_{v_5}$$

$$(R_{61})_{v_6}$$

$$(R_{62})_{v_6}$$

$$(R_{63})_{v_7}$$

$$(R_{62})_{v_8}$$

$$(R_{$$

[0121]式(S) について説明すると、式(S) 中、R。」は水素またはアリール基を表す。R。1で表され るアリール基としては置換基を有するものであってもよ 10 く、総炭素数6~30のものが好ましく、例えばフェニ ル基等が挙げられる。

【0122】R。、、R。」は各々水素、アリール基または アルケニル基を表し、これらは同一でも異なるものであ ってもよい。

【0123】R。、およびR。、で表されるアリール基とし ては置換基を有するものであってもよく、総炭素数6~ 70のものが好ましい。具体的にはフェニル基、ナフチ ル基、アントリル基等が挙げられ、置換基としてはアリ ールアミノ基 (例えばジフェニルアミノ基)、アリール 20 アミノアリール基等が好ましい。また、このような置換 基中にはスチリル基(スチリル基はさらにフェニル基、 ジフェニルアミノ基、ナフチル(フェニル)アミノ基、 ジフェニルアミノフェニル基等の置換基を有していても よい。)が含まれることも好ましく、このような場合式 (S) で示される化合物から誘導される一価の基同士 が、それ自体でまたは連結基を介して結合したような構 造であることも好ましい。

【0124】R。2、R。3 で表されるアルケニル基とし ては置換基を有するものであってもよく、総炭素数2~ 30 50のものが好ましく、ビニル基等が挙げられ、ビニル 基とともにスチリル基を形成していることが好ましく、 スチリル基はアリールアミノアリール基(例えばジフェ ニルアミノフェニル基) やアリールアミノ基(例えばジ フェニルアミノ基)等の置換基を有していてもよく、と のような場合、式(S)で示される化合物から誘導され る一価の基同士が、それ自体でまたは連結基を介して結

合したような構造であることも好ましい。

【0125】Re4、Res はアリールアミノ基または アリールアミノアリール基を表し、これらにはスチリル 基(スチリル基はさらにフェニル基等の置換基を有して いてもよい。)を含んでいてもよく、このような場合、 上記の同じく、式(S)で示される化合物から誘導され る一価の基同士がそれ自体でまたは連結基を介して結合 したような構造であることも好ましい。

[0126] v<sub>1</sub>、v<sub>2</sub>は0~5の整数を表し、v<sub>1</sub>、 v₂ が2以上のとき、R。4 同士、R。5 同士が互いに 結合してベンゼン環等の縮合環を形成してもよい。

【0127】Ree、Renは各々アルキル基、アリー ル基を表す。Rea、Reaで表されるアルキル基とし ては、置換基を有していてもよく、直鎖状でも分岐を有 していてもよく、総炭素数1~6のものが好ましく、具 体的にはメチル基、エチル基等が挙げられる。R。。、 R。7で表されるアリール基としては、置換基を有して いてもよく、単環でも多環であってもよく総炭素数6~ 20のものが好ましく、具体的にはフェニル基等が挙げ られる。

【0128】v,、v,は0~4の整数を表す。

【0129】v。は0または1を表す。式(S)のなか でも、vsがOであって、Rea、Resが結合してい てもよいジフェニルアミノ基と、Rei、Rei、R 63 が結合したビニル基とがフェニレン基に対してパラ 位となるように結合した構造が好ましい。

【0130】特に、下記式(S-1)、(S-2)で表 される化合物が好ましい。

[0131] 【化49】

【0132】式(S-1)中、Re1、Re2、Re4、Re5、V1、V2は、式(S)中のものと同義のものであり、n1は0または1を表し、Le1は結合手またはアリーレン基を表す。アリーレン基の好ましい具体例としては、フェニレン基、ピフェニレン基、ナフチレン基、アントリレン基等が挙げられ、これらの組合せも好ましく、これらの基は、さらに置換基を有していてもよい。

 $\{0\ 1\ 3\ 3\ \}$ 式  $\{S-2\}$  中、 $\{R_6\}_1$  ~ $\{R_6\}_2$  、  $\{R_6\}_3$  、  $\{R_6\}_4$  、  $\{R_6\}_4$  、  $\{R_6\}_4$  、  $\{R_6\}_4$  、  $\{R_6\}_4$  、  $\{R_6\}_4$  に  $\{R_6\}_4$  に

【0134】式(S)のスチリル系アミン化合物の具体例を以下に示す。

[0135] [化50]

[0136]

【化51】

【0137】これらの化合物は1種のみ用いても2種以 上併用してもよい。

【0138】上記のような混合層において、電荷移動度と電荷密度の積がほぼ等しくなるように電子注入輸送性化合物およびホール注入輸送性化合物を選ぶことが好ましい。さらに好ましくは前記の条件を満たしかつ電荷移動度もほぼ等しいことが好ましい。この場合、電荷移動度は、タイムオブフライト法等により求めたものであり、1×10<sup>-1</sup>~1×10<sup>-3</sup>cm²/V·sの範囲にあることが好ましい。このように電荷移動度が近くなるように化合物を選ぶことによって、i)キャリアの再結合確率を向上させることが発光効率を向上させること、ii)発光層からキャリアの突抜けが少なくなり、キャリア輸送層のダメージが小さくなり、素子の発光寿命を長寿命化できる利点がある。また、ホール注入輸送性化合物と電子注入輸送性化合物を混合することで、各電子とホールの移動度が低下し、再結合確率が向上する等の利点もある

【0139】混合層において、電子注入輸送性化合物とホール注入輸送性化合物とは均一に混合していてもよく、膜厚方向に濃度分布をもち、ホール輸送層側にてホール注入輸送性化合物の濃度が高く、電子輸送層側に向 50

かってその濃度が漸減し、一方電子輸送層側にて電子注 30 入輸送性化合物の濃度が高く、ホール輸送層側に向かっ てその濃度が漸減する傾斜膜としてもよい。傾斜膜にお いて、電子注入輸送性化合物は電子輸送層側の混合層の 1/2領域に混合層全体に存在する電子注入輸送性化合 物の95~50質量%程度存在することが好ましく、ホ ール注入輸送性化合物についても同様の関係が成立する ことが好ましい。

【0140】以上のような混合層からなる青色発光層は、電子とホールとが発光層全体に分布しており、再結合ボイントおよび発光ポイントが発光層内全体に拡がっており、層間界面近傍のみならず混合層全体で発光している。このことは実測の発光スペクトルと、発光領域を仮定して各光学界面での反射光と直接光の光学干渉シミュレーションを行った発光スペクトルをフィッティングすることで容易に確認することができる。このように層全体で発光することが可能であるため、積層した数種の波長の異なる発光を一つの素子から安定に取り出すことができ、かつ素子の発光寿命を延ばす等の利点が得られる

[0141] 本発明における青色発光層の発光極大波長は400~500mである。

63

[0] 142】上述のような混合層の厚さは $1\sim500$  nm、 さらには $20\sim200$  nmであることが好ましい。

【0143】<その他の発光色>本発明の有機EL素子は、青色発光層のほかに、これとは発光波長の異なる少なくとも1層の発光層を有する多色発光に対応したものであることが好ましい。このような発光層は、赤(発光極大波長600~700m)、緑(発光極大波長500~560m)などの発光光を発するものであってよい。

【0144】また、これらの発光層において、青色発光層と同じホスト材料を用いた混合層とし、ドーパントを加えることによって青色とは異なる色の発光光を発する発光層とすることが好ましい。これにより再結合領域が広がり、励起子の生成上好ましいものとなる。

【0145】例えば、このような混合層の好ましい一態様として、前記のフェニルアントラセン誘導体とテトラアリールベンジジン誘導体との混合物に対し、ドーパントしてナフタセン誘導体をドーブした混合層がある。例えばナフタセン誘導体としてルブレンを用いた場合赤(発光極大波長540~600m)の発光が可能にな

る。ナフタセン誘導体の添加は素子の長寿命化の観点か 20 ら好ましい。このほかベンタセン誘導体も同様の利点が得られる。これらについては、特開平8-311442 号公報、WO98/08360号、特願平10-137 505号等に記載されている。

【0146】ナフタセン誘導体としては式(N)で表される化合物が好ましい。

[0147]

[化52]

$$\begin{matrix} R_{e} & \begin{matrix} R_{d} & R_{c} \\ R_{l} & \begin{matrix} R_{d} & R_{b} \end{matrix} \end{matrix} \begin{matrix} R_{g} \\ R_{h} \end{matrix} \qquad (N)$$

【0148】式(N)において、R。、R。、R。およびR。はそれぞれ非置換、または置換基を有するアルキル基、アリール基、アミノ基、複素環基およびアルケニル基のいずれかを表し、アリール基、アミノ基、複素環基およびアルケニル基のいずれかであることが好ましい。【0149】R。、R。、R。およびR。で表されるアリール基としては、単環もしくは多環のものであってよく、縮合環や環集合も含まれる。総炭素数は、6~30のものが好ましく、置換基を有していてもよい。

【0150】R、R、R、R、およびR。で表されるアリール基としては、好ましくはフェニル基、(o-, m-, p-)トリル基、ビレニル基、ペリレニル基、コロネニル基、(1-, 2-)ナフチル基、アントリル基、(o-, m-, p-)ビフェニリル基、ターフェニル基、フェナントリル基等である。

【0151】R、、R、、R、およびR。で表されるアミノ 基としては、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、ア ラルキルアミノ基等いずれでもよい。これらは、総炭素数1~6の脂肪族、および/または1~4環の芳香族炭素環を有することが好ましい。具体的には、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジブチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、ビスジフェニリルアミノ基、ビスナフチルアミノ基等が挙げられる。

【0152】R、R、R、R、およびR。で表される複素環基としては、ヘテロ原子としてO、N、Sを含有する5員または6員環の芳香族複素環基、および炭素数2~20の縮合多環芳香複素環基等が挙げられる。芳香族複素環基および縮合多環芳香複素環基としては、例えばチェニル基、フリル基、ピロリル基、ピリジル基、キノリル基、キノキサリル基等が挙げられる。

 $\{0.15.3\}$  R<sub>a</sub>、R<sub>b</sub>、R<sub>c</sub> およびR<sub>d</sub>で表されるアルケニル基としては、少なくとも置換基の1つにフェニル基を有する(1-、および2-) フェニルアルケニル基、(1,2-、および2,2-) ジフェニルアルケニル基、  $\{1,2,2-\}$  トリフェニルアルケニル基等が好

【0154】R。、R。、R。およびR。が置換基を有する場合、これらの置換基のうちの少なくとも2つがアリール基、アミノ基、複素環基、アルケニル基およびアリーロキシ基のいずれかであることが好ましい。アリール基、アミノ基、複素環基およびアルケニル基については上記R。、R。、R。およびR。と同様である。

ましいが、非置換のものであってもよい。

[0.155] R。、R。、R。およびR。の置換基となるアリーロキシ基としては、総炭素数 $6\sim18$ のアリール基を有するものが好ましく、具体的には(o-, m-, p-) フェノキシ基等が挙げられる。

30 【0156】これら置換基の2種以上が縮合環を形成していてもよい。また、さらに置換されていてもよく、その場合の好ましい置換基としては上記と同様である。【0157】R。、R。、R。およびR。が置換基を有する場合、少なくともその2種以上が上記置換基を有するととが好ましい。その置換位置としては特に限定されるものではなく、メタ、パラ、オルト位のいずれでもよい。また、R。とR。とR。とR。はそれぞれ同じものであることが好ましいが、異なっていてもよい。

[0158] R。、R。、R。およびR。は、それぞれ水素 40 または置換基を有していてもよいアルキル基、アリール 基、アミノ基およびアルケニル基のいずれかを表す。 [0159] R。、R。、R。およびR。で表されるアルキ

【0159】R。、R,、R。およひR,で表されるアルキル基としては、炭素数が $1\sim6$ のものが好ましく、直鎖状であっても分岐を有していてもよい。アルキル基の好ましい具体例としては、メチル基、エチル基、(n, i) - プロビル基、(n, i, s e c, t e r t t) - ブ チル基、(n, i, n e o, t e r t t) - ベンチル基等が挙げられる。

[0160] R<sub>a</sub>、R<sub>a</sub>、R<sub>a</sub>、R<sub>a</sub>およびR<sub>a</sub>で表されるアリー 50 ル基、アミノ基、アルケニル基としては、上記R<sub>a</sub>、 65

 $R_{\bullet}$ 、 $R_{\bullet}$ および $R_{\bullet}$ の場合と同様である。また、 $R_{\bullet}$ と $R_{\bullet}$  に、 $R_{\bullet}$ と $R_{\bullet}$ は、それぞれ同じものであることが好ましいが、異なっていてもよい。

\* 具体例は式 (N) の表示の組合せにより示している。 【0162】 【化53】

【0161】ナフタセン誘導体の具体例を以下に示す。\*

No.	Ra	R <sub>b</sub>	Rc	$R_d$	Re	Rf	Rg	$R_h$
1	$-\mathbf{Ph}$	$-\mathbf{H}$	-н	$-\mathtt{Ph}$	_ <b>H</b>	-н	$-\mathbf{H}$	-H
2	-⊙-⊙	<b>−H</b> .	$-\mathtt{H}$	-@-@	-н	-н	_H	-н
3	-© ©			-© ©	<b>-H</b>	-н	-н	-н
4	-@ @	$-\mathbf{H}$	-н	-© ©	-н	-н	-H	-н
5	<b>⊙</b> ∘©−	-н	-н	- <b>©</b> ∘	-н	-н	-н	-н
6	- <b>⊙</b> -CH <sub>3</sub>	-н	$-\mathbf{H}$	-€0-CH3	-H	-н	-H	<b>-H</b>
7	-© <sub>сн₃</sub>	-н		-© CH₃			-н	
8	⊣ <b>⊙</b> H₃C	-н	-н	н <sub>э</sub> с	-н	-н	$-\mathbf{H}$	-н
9	-@ <del>-</del> @-@	-н	-н	-0-0 0	-н	-н	-н	-Н
10	-© <sub>3</sub> -@	-н	-н	- <del></del>	-н	-н	-н	<b>-H</b>
11	-@~ <u>~</u> @	-H	-н	<del>-©-</del> ~-@	-н	-н	-н	-H
12	-©-©	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-©-©	-СНз	−СН₃	-CH <sub>3</sub>	−СН₃
13	-@-@	-H	-н	-©-⊙	-CH₃	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-СН3

【化54】

[0163]

	67						68	
No.	Ra	Rb	$R_c$	Rd	R,	$\mathbf{R}_{\mathbf{f}}$	Rg	$\mathbf{R}_{\mathbf{b}}$
14	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-н	-H	$-\mathbf{H}$
15	-⊙-⊙	-Ph		-Ph	-H	-н	-н	-н
16	-© ©	-@ <del>-</del> @	→® ©	-©-©	- <b>H</b>	-н	-н	H
17	<b>-</b> €7}-СН <sub>3</sub>	-Ph	- <del>©</del> -cH₃	-Ph	-н	-н	-н	-H
18	-@-@	- <b>⊙</b> -CH₃	-@-@	–∰-сн₃	-н	-н	-н	$-\mathbf{H}_{i}$
19	<b>-©∘</b>	-Ph	-@∙@ <u>-</u>	-Ph	-н	<b>-н</b>	-н	-н
20	- <del>-</del>	-Ph	-Ph	-⊕-⊕	<b>-H</b>	-H	-H	- <b>H</b>
21		-Ph	-@ <del> </del> -@	- <b>Ph</b>	-н	-н	-н	-н
22	-@ <sub>3</sub> -@	-Ph	- <del>-</del>	-Ph	-н	-н	-н	-н
23	-@-v-@	-Ph	-®~\@	$-\mathbf{Ph}$	-н	-н	-н	-н
24	-@-@	-Q <sub>3</sub>	-@-@	-@ <sub>3</sub>	-н	-н	-н	- <b>H</b>
25	<del>-</del> Ø-Ø	-@-@	<b>-</b> @ <b>-</b> @	-@-@	-н	-н	-н	-H

[0164]

[化55]

0		
	0	0

	- 69							
No.	Ra	Rb	Rc	Rd	Re	Re	$R_g$	R <sub>h</sub>
26	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	<b>-H</b>	-н
27	-©-©	-Ph	<del>-</del> ©-©	-Ph	-Ph	-Ph	-н	$-\mathbf{H}$
28	-© 6	-@-®	_® ©		-Ph	-Ph	-н	-н
29	<b>-</b> €∑-сн₃	-Ph	<del>-</del> ∰-сн₃	-Ph	-Ph	-Ph	<b>−H</b>	-н
30	<del>-</del> @®	(⊡)-CH₃	-©-©	-{О}-сн₃	-Ph	-Ph	-н	-н
31	-©∘@-	<b>-Р</b> ь	<b>⊕</b> °⊕	-Ph	-Ph	-Ph	_ <b>-</b> H	-н
32	- <del>-</del> ©©		-Ph					
33	-@ <del> </del> @	-Ph	-0 <del>)-0</del>	-Ph	-Ph	-Ph	-н	-н
34	-@ <sub>}-@</sub>	-Ph	- <del>0</del> >-0	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-н
35	-©-\-©	−Ph	-©-v <sub>-©</sub>	~Ph	-Ph	-Ph	-н	-н
36	<b>-©-</b> ©	-@_>	-@-@	-@ <sub>3</sub>	-Ph	-Ph	-н	–н
37	-©-©	<b>-</b> ⊕-⊕		-@-@	-Ph	-Ph	-н	-н

【化56】

[0165]

. 72

		•						
No.	Ra	$R_b$	, R <sub>c</sub>	Rd	$R_{e}$	Rr	Rg	$R_h$
38	$-\mathtt{P}\mathbf{h}$	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
89	-⊕-⊕	-Ph	-(7)-(7)	~Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
40	-© ©	-@-@	-© ©	-@@	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
41	{О}-сн₃	-Ph	<b>–</b> Ѿ-сн₃	−Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
42	-©-©	<b>-</b> ⊙-cH₃	-©-©	<b>–</b> ∰-Сн₃	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
43	<b>⊸</b> 0-0⊸	-Ph	<b>⊕</b> ∘⊚	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
44	<b>-©-</b> ⊙	-Ph	-Ph	-⊙-⊙	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
45		-Ph	-@ <del>_</del> @	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
46		-Ph	-©	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
47	-0-40	-Ph	-®~v®	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
48	-@-@	-@ <u>`</u>	<b>-⊙-</b> ⊙	<b>−©</b> _	-Ph	-Ph	-Ph	<b>−Ph</b>
49	<del>-</del> @ <del>-</del> @	-©-©	-©-©	-⊕-⊕	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph

【0166】これらの化合物は1種のみ用いても2種以 上用いてもよい。

[0167]混合層におけるナフタセン誘導体の使用量は $0.1\sim20$ 質量%であることが好ましい。

【0168】また、このような混合層におけるフェニルアントラセン誘導体とテトラアリールベンジジン誘導体との混合比はフェニルアントラセン誘導体/テトラアリールベンジジン誘導体の体積比が $90/10\sim10/9$ 0であることが好ましい。その厚さは $1\sim500\,\mathrm{nm}$ さらには $10\sim200\,\mathrm{nm}$ であることが好ましい。

【0169】本発明では、青色発光層を含め、2層あるいは3層の発光層を設け、白色発光するような素子を構成することができる。

【0170】<ホール輸送および/または注入層>本発明では、一部前記したが、ホール輸送および/または注入層を設けることが好ましい。ホール輸送層を設け、その層中のホール注入輸送性化合物を発光層のホスト材料として用いるような態様でない場合においても、ホール輸送および/または注入層(ホール注入輸送層という場合もある)を設けることが好ましい。この場合のホール 50

注入輸送性化合物としては芳香族三級アミンを用いることが好ましく、式(1)で表されるテトラアリールベンジジン誘導体および式(2)で表されるトリフェニルアミン誘導体が好ましい。式(1)については前述のとおりである。式(2)について説明する。

[0171] [化57]

$$(R_{01})r_{01}$$
  $(R_{04})r_{04}$   $(R_{02})r_{02}$   $(R_{02})r_{03}$   $(R_{03})r_{03}$ 

【0172】式(2)において、2つのΦはフェニレン基を表す。Φ-Φのピフェニレン基としては、4,4'-ビフェニレン基、3,3'-ビフェニレン基、3,4'-ビフェニレン基、2,2'-ビフェニレン基、2,3'-ビフェニレン基、2,4'-ビフェニレン基のいずれであってもよいが、特に4,4'-ビフェニレン基が好ましい。

[0173]また、R。1、R。2、R。3およびR。4は、そ

れぞれ、アルキル基、アリール基、ジアリールアミノア \*【0174】 リール基、 \* 【化58】

(ここで、R<sub>011</sub>、R<sub>012</sub>、R<sub>013</sub>、R<sub>014</sub>、R<sub>015</sub>、R<sub>016</sub>およびR<sub>017</sub>は、 それぞれ、アリール基を表す。)

 $[0\ 1\ 7\ 5]$  のいずれかを表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。ただし、 $R_{01}\sim R_{04}$ の少なくとも一つはジアリールアミノアリール基、または前記(a-1)~(a-3) のいずれかを表す。 $R_{011},\ R_{012},\ R_{013},\ R_{014},\ R_{015},\ R_{015}$ および $R_{017}$ で表されるアリール基は、それぞれ、無置換であっても置換基を有するものであってもよい。

【0176】R。1、R。1、R。1、R。2で表されるアルキル基は置換基を有していてもよく、直鎖状でも分岐を有 20していてもよく、総炭素数1~20のものが好ましく、具体的にはメチル基、エチル基等が挙げられる。

【0177】 $R_{01}$ ,  $R_{02}$ ,  $R_{03}$ ,  $R_{04}$ ,  $R_{011}$ ,  $R_{012}$ ,  $R_{013}$ ,  $R_{014}$ ,  $R_{015}$ ,  $R_{016}$  および $R_{017}$ で表されるアリール基としては、単環または多環のものであってよく、総炭素数 $6\sim20$ のものが好ましく、具体的には、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ビレニル基、ベリレニル基および0-, m-またはp-ビフェニル基等が挙げられる。これらアリール基はさらに置換されていてもよく、このような置換基としては、炭素数 $1\sim60$ アルキル基、無置換もしくは置換基を有するアリール基またはアルコキシ基、アリーロキシ基および-N( $R_{021}$ ) $R_{022}$ 等が挙げられる。ここで、 $R_{021}$ および $R_{022}$ は、それぞれ、無置換または置換基を有するアリール基を表す。

【0178】R。これはびR。こで表されるアリール基としては、単環または多環のものであってよく、総炭素数6~20のものが好ましく、具体的には、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ピレニル基、ベリレニル基およびの一、mーまたはワービフェニル基等が挙げられ、特に好ましくはフェニル基が挙げられる。これらアリール基はさらに置換されていてもよく、このような置換基としては、炭素数1~6のアルキル基、無置換または置換基を有するアリール基等が挙げられる。前記アルキル基としては好ましくはメチル基が挙げられ、前記アリール基としては好ましくはフェニル基が挙げられる。

【0179】また、Ro1、Ro2、Ro3もよびRo1で表されるジアリールアミノアリール基は、例えばジアリールアミノアリール アミノフェニル基であり、このような基においてジアリ 50

ールアミノ基が式(2)で表される骨格に対してメタ位(3位)またはバラ位(4位)に結合しているものが好ましい。このときのフェニル基は、さらに置換基を有していてもよいが、ジアリールアミノ基のみを有することが好ましい。

【0180】ジアリールアミノ基中のアリール基として は、単環または多環のものであってよく、総炭素数6~ 20のものが好ましく、具体的には、フェニル基、ナフ チル基、アントリル基、フェナントリル基、ピレニル 基、ペリレニル基およびo-, m-またはp-ビフェニ ル基等が挙げられ、特に好ましくはフェニル基が挙げら れる。これらアリール基はさらに置換されていてもよ く、このような置換基としては、炭素数1~6のアルキ ル基、無置換または置換基を有するアリール基等が挙げ られる。前記アルキル基としては好ましくはメチル基が 挙げられ、前記アリール基としては好ましくはフェニル 基が挙げられる。また、アリール基の置換基としては、 式(2)中のR。1~R。1で表されるジアリールアミノア リール基以外の上記の基も好ましい。置換基を2以上有 する場合、それらは同一でも異なっていてもよい。ま た、置換基は、Nの結合位置に対してメタ位あるいはパ ラ位に結合していることが好ましい。

[0181]また、式(2)において、 r., r., r., r 。」および r。、は、それぞれ、0~5、好ましくは0~2 の整数を表すが、特に0または1であることが好まし い。そして、 r。1+ r。2+ r。3+ r。4は、1以上、特に 1~4、さらには2~4が好ましい。前記R。1. R。2. R。,およびR。4は、Nの結合位置に対してメタ位あるい はバラ位に結合し、Ros, Ros, およびRosの全て がメタ位、Ro1、Ro2、Ro3およびRo4の全てがパラ 位、あるいは、Roi、Roi、RoiおよびRoiがメタ位あ るいはパラ位に結合していても、これらが混在していて もよい。 Γοι, Γοι, Γοι または Γοι が2以上である場 合、R。。同士、R。。同士、R。。同士またはR。。同士は同 一でも異なっていてもよく、さらにはこれらの隣接する もの同士が互いに結合して環を形成してもよい。このよ うな環はベンゼン環等の芳香族の環であっても、シクロ ヘキサン環等の脂肪族の環であってもよい。

[0182]式(2)の好ましい具体例を以下に示す

が、これに限定されるものではない。 【0.183】 \*【化59】

[0184]

【0185】これらは1種のみ用いても2種以上併用してもよい。

[0186] 発光層側から、ホール輸送層、ホール注入 より電子をブロックする機能が向上する。いずれにせ 層を順に設けるときは、ホール輸送層に式(1)の化合 50 よ、ホール輸送層にはベンジジン骨格を有し、フェニレ

物を用い、ホール注入層に式(2)の化合物を用いると とが好ましい。このような化合物を組み合わせることに より電子をブロックする機能が向上する。いずれにせ ンジアミン骨格をもたない芳香族三級アミンを用いることが好ましく、ホール注入層にはフェニレンジアミン骨格をもつ芳香族三級アミンを用いることが好ましい。

 $[0\,1\,8\,7]$  ホール注入層の厚さは $1\sim1\,0\,0\,0$  nm、さらには $1\sim1\,0\,0$  nmが好ましく、ホール輸送層の厚さは $1\sim2\,0\,0$  nm、さらには $5\sim1\,0\,0$  nmが好ましい。これらの層を1層のみ設けるときは $1\sim1\,0\,0\,0$  nm、さらには $1\,0\sim5\,0\,0$  nmの厚さとすることが好ましい。

【0188】〈電子輸送および/または注入層〉本発明では、一部前記したが、電子輸送および/または注入層 10を設けることが好ましい。電子輸送層を設け、その層中の電子注入輸送性化合物を発光層のホスト材料として用いるような態様でない場合においても、電子輸送および/または注入層(電子注入輸送層という場合もある)を設けることが好ましい。この場合の電子注入輸送性化合物としては前記のフェニルアントラセン誘導体のほか、トリス(8ーキノリノラト)アルミニウム(A1Q3)等の8ーキノリノールないしその誘導体を配位子とする有機金属錯体などのキノリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ペリレン誘導体、ビリジン誘導体、ビリミジン 20誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ニトロ置換フルオレン誘導体等を用いることができる。

【0189】特に、式(A)のジフェニルアントラン誘導体と8-キノリノールないしその誘導体を配位子とするアルミニウム錯体(特にトリス(8-キノリノラト)アルミニウム)とを用い、前者を発光層側の電子輸送層に用い、後者を陰極側の電子注入層に用いることも好ましい。なお、8-キノリノール)ないしその誘導体を配位子とするアルミニウム錯体についてはWO98/08360号等に開示されている。

[0190]電子注入層の厚さは $1\sim1000$  nm、さらには $1\sim100$  nmが好ましく、電子輸送層の厚さは $1\sim500$  nm、さらには $1\sim100$  nmが好ましい。これらの層を1層のみ設けるときは $1\sim100$  nm、さらには $1\sim100$  nmの厚さとすることが好ましい。

【0191】<降極>本発明において用いられる陰極材料には、アルカリ金属(Li、Na、K、Rb、Cs等)のハロゲン化物、酸化物を用いることが好ましい。具体的にはフッ化リチウム(LiF)、塩化リチウム(LiCl)、臭化リチウム(LiBr)、ヨウ化リチウム(LiI)、フッ化ナトリウム(NaF)、塩化ナトリウム(NaCl)、臭化ナトリウム(NaBr)、ヨウ化ナトリウム(NaI)、フッ化ルビジウム(Rb F)、塩化ルビジウム(RbCl)、臭化ルビジウム(RbBr)、ヨウ化ルビジウム(RbI)、フッ化セシウム(CsF)、塩化セシウム(CsCl)、臭化セシウム(CsBr)、ヨウ化セシウム(CsI)のハロゲン化物や、酸化リチウム(LiO)、酸化ナトリウム(NaO)等の酸化物が挙げられる。特にRb、C

s 等のハロゲン化物、とりわけ塩化物、ヨウ化物が好ましい。

【0192】アルカリ金属のハロゲン化物、酸化物を下層とし、さらに仕事関数の小さい材料(例えば、Li、Na、K、Mg、Ai、Ag、In、あるいは、これらの1種以上を含む合金)で積層してもよい。陰極は、結晶粒が細かいことが好ましく、特にアモルファス状態であることが好ましい。陰極の合計厚さは10~1000m程度とすることが好ましい。下層を用いた構成での下層の厚さは0.1~1m程度である。

【0193】陰極材料としてアルカリ金属のハロゲン化物、酸化物を用いることは、青色発光層を有する素子では特に有効であり、青色発光光を安定して得ることができる。青色発光系ではホストのエネルギーギャップが緑系に比べ大きいので、より高効率の電子注入性とホール注入性が要求される。従来のMgAgのような陰極では電子注入効率が悪く、これにかわる高効率な材料としてアルカリ金属系が有効である。それは仕事関数が小さいためである。また、ハロゲン化物、酸化物の形態をとっても仕事関数は変化しないし、あるいは電界がかかったときに還元等が起こり金属になり得る。よって取り扱いが容易な電子注入材料として最適である。また、有機膜と電極との密着向上の効果もある。

【0194】アルカリ金属のハロゲン化物、酸化物を陰極材料として用いることは、特に、青色発光層にその隣接層となる電子輸送層やホール輸送層の電子注入輸送性化合物やホール注入輸送性化合物をホスト材料として用いない態様においては必須である。

【0 1 9 5 】また、陰極界面の有機物層にL i 等の金属 ・ をドープしてもよい。

【0196】また、電極形成の最後にA1や、フッ素系 化合物を蒸着・スパッタすることで封止効果が向上す エ

[0197]なお、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(A1Q3)等を電子注入および/または輸送層に用い、陰極をスパッタにより形成するような場合、電子注入および/または輸送層に対するスパッタによるダメージを防止するために、電子注入および/または輸送層と陰極との間にルブレン等のナフタセン誘導体(前

記)の層を0.1~20m厚に形成することができる。 [0198] <陽極>有機EL素子を面発光させるためには、少なくとも一方の電極が透明ないし半透明である必要があり、上記のように陰極の材料には制限があるので、好ましくは発光光の透過率が80%以上となるように陽極の材料および厚さを決定することが好ましい。具体的には、例えば、ITO(錫ドーブ酸化インジウム)、Sn

O, 、Ni、Au、Pt、Pd、ドーパントをドープしたボリビロールなどを陽極に用いることが好ましく、特50 にITO、IZOが好ましい。ITOは、通常In. O

,とSnOとを化学量論組成で含有するが、酸素量は多少これから偏倚していてもよい。IZOは、通常InzO,とZnOとを化学量論組成で含有するが、酸素量は多少これから偏倚していてもよい。InzO,に対するSnOzの混合比は、1~20質量%、さらには5~12質量%が好ましい。また、IZOでのInzO,に対するZnOの混合比は、通常、12~32質量%程度である。また、陽極の厚さは10~500nm程度とすることが好ましい。また、素子の信頼性を向上させるために駆動電圧が低いことが必要であるが、好ましいものとして10~30Ω/□または10Ω/□以下(通常0.1~10~10Ω/□)のITOが挙げられる。

[0199]また、ディスプレイのような大きいデバイスにおいては、ITOの抵抗が大きくなるのでA1配線をしてもよい。

【0200】<基板材料>基板材料に特に制限はないが、基板側から発光光を取り出すためには、ガラスや樹脂等の透明ないし半透明材料を用いる。また、基板にカラーフィルター膜や蛍光性物質を含む蛍光変換フィルター膜、あるいは誘電体反射膜を用いたり、基板自身に着色したりして発光色をコントロールしてもよい。

【0201】カラーフィルター膜には、液晶ディスプレイ等で用いられているカラーフィルターを用いればよいが、有機EL素子の発光する光に合わせてカラーフィルターの特性を調整し、取り出し効率・色純度を最適化すればよい。

【0202】また、EL素子材料や蛍光変換層が光吸収 するような短波長の外光をカットできるカラーフィルタ ーを用いれば、素子の耐光性・表示のコントラストも向 上する。

- 【0203】また、誘電体多層膜のような光学薄膜を用いてカラーフィルターの代わりにしてもよい。

【0204】蛍光変換フィルター膜は、EL発光の光を吸収し、蛍光変換膜中の蛍光体から光を放出させることで、発光色の色変換を行うものであるが、組成としては、バインダー、蛍光材料、光吸収材料の三つから形成される。

[0205] 蛍光材料は、基本的には蛍光量子収率が高いものを用いればよく、EL発光波長域に吸収が強いことが好ましい。実際には、レーザー色素などが適しており、ローダミン系化合物・ペリレン系化合物・シアニン系化合物・フタロシアニン系化合物・サブフタロシアニン等も含む)・ナフタロイミド系化合物・縮合環炭化水素系化合物・縮合複素環系化合物・スチリル系化合物・クマリン系化合物等を用いればよい。

【0206】バインダーは基本的に蛍光を消光しないような材料を選べばよく、フォトリソグラフィー・印刷等で微細なパターニングができるようなものが好ましい。また、1TOの成膜時にダメージを受けないような材料が好ましい。

[0207] 光吸収材料は、蛍光材料の光吸収が足りない場合に用いるが、必要のない場合は用いなくてもよい。光吸収材料は、蛍光性材料の蛍光を消光しないような材料を選べばよい。

【0208】 <カラーフィルターを用いた発光色変調>本発明では、前述の有機E L素子とカラーフィルターとを組み合わせることによって、前述の有機E L素子の発光色を変調させることができ、これにより、多色発光有機E Lディスプレイ(多色発光装置)が容易に提供できる。

【0209】こうした装置に前述の有機EL素子を適用する場合、前述の有機EL素子は、互いに対向する一対の電極間に、発光層を含む有機EL素子が挟持され、少なくとも一方の電極は透明電極であることが好ましいが、カラーフィルターが用いられるので、少なくとも一方の電極は透明電極であることが必要であり、透明電極側から発光光を取り出すため、カラーフィルターは透明電極側に設置される。

[0210] とこで、有機層とは有機化合物を含有する 層をいい、有機化合物には有機化合物を配位子とする金 属錯体や有機金属化合物などを含むものとする。

【0211】上記の装置は、セグメント型の表示部を有するものであっても、ドットマトリックス型の表示部を有するものであってもよいが、これら両方の表示部を備えるものであってもよい。

【0212】ドットマトリックス型の表示部は、互いに対向し、かつ交差するように、一対の複数の電極が配列されたXYマトリックス型電極を有し、この交差部分の電極間に有機層を挟持させることによって画素を形成したものである。カラーフィルターはこの画素の透明電極側に設置することが好ましい。また、画素の周辺部であって、カラーフィルター設置部位近傍(通常カラーフィルター間)にはブラックマトリックスを設置することが好ましい。ブラックマトリックスによりカラーフィルター間の漏れ光を防止することができ、これにより多色発光の視認性を高めることができる。

【0213】 ことで、画素とは他の領域とは独立に励起されて発光することができる画像表示配列の領域をいう。

【0214】上記の複数の電極は、通常ストライプ状電極であり、一対の電極はほぼ直交するように配列される。なお、製造上、ストライプ状電極は、一方の電極を形成した後に他方の電極が形成されることが多く、また、層間絶縁膜を用いてドットマトリックス型の表示部が形成されることが多いため、後に形成される他方のストライブ状電極がほぼ同一平面上に形成されない場合や、一本の同一方向のストライブが連続膜とならない場合などが生じ得るが、ほぼ直交する交差部分が存在しさえすれば差しつかえない。

50 [0215]例えば、ドットマトリックス型表示部を形

成する方法としては次の方法がある。透明基板(ガラス等)上に所定のカラーフィルター層を形成し、とのカラーフィルター層の透明電極形成面に、好ましくはこの面の平坦性を向上させるために、アクリル樹脂やポリイミド等の透明樹脂で形成された1μm~5mm厚のオーバーコート層を設ける。このオーバーコート層はカラーフィルターの保護層としても機能する。このオーバーコート層をバターニングし、パターニングしたオーバーコート層上に透明電極を形成する。なお、透明電極層とオーバーコート層との間にはパッシベーション層として透明か 10つ電気絶縁性無機酸化物層を設けてもよい。

[0216] パターニングした透明電極層を含む面に、 $10\,\mathrm{nm}\sim100\,\mu\mathrm{m}$  厚の層間絶縁膜を設け、透明電極形成部位以外の部位に絶縁膜が残るようにする。絶縁膜は、 $\mathrm{SiO}_z$ 、 $\mathrm{SiN}_x$ 等の無機化合物のほか、ポリイミド、アクリル樹脂、エポキシ樹脂等の樹脂で形成するととができる。

【0217】さらに、この場合、絶縁膜のほかに、絶縁膜上にスペーサーを形成したり、スペーサー上にさらにスペーサーより幅の大きいオーバーハング体を形成した 20りして、素子分離する方法もある(特開平9-330792号等)。

[0218] この後、前述の有機EL素子中の発光層を含む有機層を形成し、さらに対電極を前記の透明電極と交差するように設ければ電極対の交差部分に発光機能をもたせることができる。上記の絶縁膜は、素子形成後においても、残すようにすることが好ましく、上記の絶縁膜の存在により、基板面から見えない部分での無駄な発光を避けることができる。また、ブラックマトリックスを用いる場合は、カラーフィルター層間に、ブラックマ 30トリクッス層を設置すればよい。

[0219] <カラーフィルターおよびブラックマトリックス>

## i ) カラーフィルター

本発明に用いられるカラーフィルターとしては、例え は、下記の色素のみまたは、色素をバインダー樹脂中に 溶解または分散させた固体状態のものを挙げることがで きる。

【0220】赤色(R)色素:ペリレン系顔料、レーキ 顔料、アゾ系顔料、キナクリドン系顔料、アントラキノ 40 ン系顔料、アントラセン系顔料、イソインドリン系顔 料、イソインドリノン系顔料等の単品および少なくとも 二種類以上の混合物

[0221] 緑色(G)色素:ハロゲン多置換フタロシアニン系顔料、ハロゲン多置換銅フタロシアニン系顔料、トリフェルメタン系塩基性染料、イソインドリン系顔料、イソインドリノン系顔料等の単品および少なくとも二種類以上の混合物

[0222] 青色(B)色素: 銅フタロシアニン系顔料、インダンスロン系顔料、インドフェノール系顔料、

シアニン系顔料、ジオキサジン系顔料等の単品および少 なくとも二種類以上の混合物

【0223】一方、バインダー樹脂は、透明な(可視光50%以上)材料が好ましい。例えば、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂(高分子)が挙げられる。

【0224】なお、カラーフィルターを平面的に分離配置するために、フォトリソグラフィー法が適用できる感光性樹脂も選ばれる。例えば、アクリル酸系、メタクリル酸系、ポリケイ皮酸ビニル系、環ゴム系等の反応性ビニル基を有する光硬化型レジスト材料が挙げられる。また、印刷法を用いる場合には、透明な樹脂を用いた印刷インキ(メジウム)が選ばれる。例えば、ボリ塩化ビニル樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ポリアミド樹脂のモノマー、オリゴマー、ボリマーからなる組成物、また、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルビロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂を用いることができる。

【0225】カラーフィルターが主に色素からなる場合は、所望のカラーフィルターバターンのマスクを介して真空蒸着またはスパッタリング法で成膜され、一方、色素とバインダー樹脂からなる場合は、蛍光色素と上記樹脂およびレジストを混合、分散または可溶化させ、スピンコート、ロールコート、キャスト法等の方法で成膜

し、フォトリソグラフィー法で所望のカラーフィルター パターンでパターニングしたり、印刷等の方法で所望の カラーフィルターのパターンでパターニングし、熱処理 して硬化させるのが一般的である。

【0226】それぞれのカラーフィルターの膜厚と透過率は、下記とすることが好ましい。R:膜厚0.5~20μm (透過率50%以上/610nm), G:膜厚0.5~20μm (透過率50%以上/545nm), B:膜厚0.2~20μm (透過率50%以上/460nm)

(0227)また、特にカラーフィルターが色素とバインダー樹脂からなるものは、色素の濃度が、カラーフィルターが問題なくパターニングできて、かつ、有機EL素子の発光を十分透過できる範囲であればよい。色素の種類にもよるが、使用するバインダー樹脂を含めたカラーフィルター膜に色素が5~50質量%含まれる。

【0228】ii)ブラックマトリックス

本発明に用いられるブラックマトリックスとしては、例えば、下記の金属および金属酸化物薄膜、並びに黒色色素を挙げることができる。金属および金属酸化物薄膜の50 具体例としては、クロム(Cr)、ニッケル(Ni)、

銅(Cu)等の金属およびその酸化物の薄膜を挙げると とができる。上記金属および金属酸化物の混合物として は、光学濃度3.0以上(膜厚10~300mm(100 ~3000A))のものが好ましい。

[0229] 黒色色素の具体例としては、カーボンブラック、チタンブラック、アニリンブラックまたはカラーフィルターの色素を混合して、黒色化したもの、またはカラーフィルターと同じように上記色素をパインダー樹脂中に溶解または分散させた固体状態のものを挙げるととができる。

[0230] 金属および金属酸化物薄膜は、スパッタリング法、蒸着法、CVD法等により絶縁性基板全面か、マスキングの手法により少なくとも表示部全面に成膜後、フォトリソグラフィー法によりパターニングを行って、ブラックマトリックスのパターンを形成することができる。

【0231】黒色色素を用いた場合は、カラーフィルターの場合と同様にパターニングして、ブラックマトリックスを形成することができる。

[0232] <保護層(透明平坦膜>本発明において、必要に応じて用いられる保護層(透明平坦膜)は、カラーフィルター(ブラックマトリックスを含む)が物理的に傷つくこと、外部の環境因子(水、酸素、光)により劣化するのを保護するために用いられる。その材料としては、透明な(可視光50%以上)材料であることが好ましい。

【0233】具体的には、光硬化型樹脂および/または熱硬化型樹脂のように、アクリレート系、メタクリレート系の反応性ビニル基を有するものを挙げることができる。また、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキド樹 30脂、エボキシ樹脂、ボリウレタン樹脂、ボリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ボリアミド樹脂のモノマー、オリゴマー、ボリマー、ボリメチルメタクリレート、ボリアクリレート、ボリカーボネート、ボリビニルアルコール、ボリビニルピロリドン、ボリイミド、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂を挙げることができる。カラーフィルターおよび有機EL素子の耐光性を高めるために、保護層中に紫外線吸収剤を添加することもできる。

【0234】保護層は、上記材料を、液状の場合はスピ 40 ンコート、ロールコート、キャスト法等の方法で成膜 し、光硬化型樹脂は光の照射後必要に応じて熱硬化さ せ、熱硬化型は成膜後そのまま熱硬化させる。フィルム 状の場合は、そのまま、粘着剤を塗布して貼着してもよ い。

[0235] 保護層の厚さは、視野角にほとんど影響を及ぼさないので、特に制限はないが、厚くなりすぎると、光の透過率に影響を及ぼすので、通常 1 μ m ~ 5 mm の範囲で選ぶことができる。

【0236】<透明かつ電気絶縁性無機酸化物層>本発 50

明に用いられる透明かつ電気絶縁性無機酸化物層は、例えば、蒸着またはスパッタリング、ディビング等でカラーフィルター上または保護層上に積層することによって形成することができる。なお、この透明かつ電気絶縁性無機酸化物層は、単層であっても、二層以上の複層であってもよい。例えば、二層とすることによって、下層の無機酸化物層(例えばソーダー石灰ガラスなど)からの無機イオンの溶出を上層の無機酸化物層で抑え、溶出イオンから有機EL素子を保護することができる。

84

[0237] その材料としては、酸化ケイ素(SiO<sub>2</sub>)、酸化アルミニウム( $A1_2O_3$ )、酸化チタン( $TiO_2$ )、酸化イットリウム( $Y_2O_3$ )、酸化ゲルマニウム( $GeO_2$ )、酸化亜鉛(ZnO)、酸化マグネシウム(MgO)、酸化カルシウム(CaO)、ほう酸( $B_2O_3$ )、酸化ストロンチウム(SrO)、酸化バリウム(BaO)、酸化鉛(PbO)、ジルコニア( $ZrO_2$ )、酸化ナトリウム( $Na_2O$ )、酸化リチウム( $Li_2O$ )、酸化カリウム( $K_2O$ )等を挙げることができるが、酸化シリコン、酸化アルミニウム、酸化チタンが、その層(膜)の透明性が高く、その成膜温度が比較的低温(250 で以下)であり、カラーフィルタまたは保護層をほとんど劣化させないので好ましい。

[0238]また、透明かつ電気絶縁性無機酸化物層として、ガラス板、または、上記の酸化ケイ素、酸化アルミニウム、および酸化チタン等からなる群から選ばれる一種以上の化合物を、透明な絶縁性のガラス板の上面または下面の少なくとも一方に成膜したガラス板の場合は、カラーフィルタ上または保護層上に貼り合わせるだけの低温(150℃以下)操作が可能であり、カラーフィルタ上または保護層を全く劣化させないのでより好ましい。また、ガラス板は、特に水蒸気、酸素またはモノマー等の劣化ガスを遮断する効果が大きい。

[0239] ガラス板の組成としては、表1または表2 に示すものを挙げることができる。特に、ソーダー石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸塩ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス等を挙げることができる。なお、ここで電気絶縁性無機酸化物層は、その組成として、無機酸化物を主に含むものであればよく、窒化物(例えば Si,N4)が含まれていてもよい。

【0240】透明かつ電気絶縁性無機酸化物層の膜厚は、有機EL素子の発光を妨げないものであれば特に制限はないが、本発明では、0.01μm以上200μm以下が好ましい。ガラス板、または、上記の酸化ケイ素、酸化アルミニウム、および酸化チタン等からなる群から選ばれる一種以上の化合物を、透明な絶縁性のガラス板の上面または下面の少なくとも一方に成膜したガラス板は、板ガラスの精度、強度上、1μm以上200μm以下が好ましい。なお、ここで、透明かつ電気絶縁性無機酸化物層の膜厚が、小さくなると、無機酸化物粒子

の単層膜に近づき、カラーフィルターまたは保護層の有機物から発生する水蒸気、酸素またはモノマー等の劣化ガスを遮断することが困難となり、膜厚が大きくなると、カラーフィルターの精細度にもよるが、有機EL素子の発光がカラーフィルターとのギャップから漏れた

\* し、多色発光の視野角を狭めて、多色発光装置の実用性 を低下させることがある。

[0241]

【表1】

【衣】

ーとのギャップから漏れた *
ガラス組成系
1) R2O-R' O-SiO2 · Na2O-CaO/MgO-SiO2 (7-45K752) · Na2O/K2O-BaO/SrO-SiO2 · Na2O/K2O-CaO/ZnO-SiO2
2) R <sub>2</sub> O-PbO-SiO <sub>2</sub> ・K <sub>2</sub> O/Na <sub>2</sub> O-PbO-SiO <sub>2</sub> (発力ラス)
3) R <sub>2</sub> O - B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> - S i O <sub>2</sub> ・N <sub>2</sub> O - B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> - S i O <sub>2</sub> (ホウケイ酸ガラス) ・K <sub>2</sub> O - B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> - S i O <sub>2</sub>
4) R' $O-B_2O_3-S$ i $O_2$ • P b $O-B_2O_3-S$ i $O_2$ • P b $O/Z$ n $O-B_2O_3-S$ i $O_2$ • P b $O-B_2O_3-S$ i $O_2+(747-)$ • $Z$ n $O-B_2O_3-S$ i $O_2$
5) R' O-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub> CaO/MgO-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub> (アルミノゲイ酸塩ガラス) ・MgO-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub> ・P5O/ZnO-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub>
6) R <sub>2</sub> O-A l <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -S i O <sub>2</sub> · L i <sub>2</sub> O-A l <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -S i O <sub>2</sub> · N 2 <sub>2</sub> O-A l <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -S i O <sub>2</sub>
7) R' O-TiO2-SiO2 BaO-TiO2-SiO2
8) R <sub>2</sub> O - Z r O <sub>2</sub> - S i O <sub>2</sub> · N a <sub>2</sub> O / L i <sub>2</sub> O - Z r O <sub>2</sub> - S i O <sub>2</sub>
9) R' 0-P <sub>2</sub> 0 <sub>5</sub> -S i 0 <sub>2</sub> C a 0-P <sub>2</sub> 0 <sub>5</sub> -S i 0 <sub>2</sub>
10) R' 0-S i 02 C a 0/B a 0/P 5 0-S i 02
11) S i O <sub>2</sub>
12) R <sub>2</sub> O-R' O-B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> · L i <sub>2</sub> O-B e O-B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
13) R' O-R2' O3-B2O3 · C a O / B a O - A   2O3-B2O3 · C a O / P b O - L u2O3-B2O3
14) R <sub>2</sub> 0-A 1 <sub>2</sub> 0 <sub>3</sub> -P <sub>2</sub> 0 <sub>5</sub> K <sub>2</sub> 0-A 1 <sub>2</sub> 0 <sub>3</sub> -P <sub>2</sub> 0 <sub>5</sub>
15) R' O-A 1203-P205 · B a O/C a O-A 1203-P205 · Z n O-A 1203-P205

R : 1 価の元素 R : 2 価の元素 P : 3 価の元素

:	87	88
	区 分	組成物 (生として1~3成分系として扱わす)
1	华特别比纳	S I O <sub>2</sub> . B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> . G e O <sub>2</sub> . A s <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
2	ケイ数塩	$Li_2O-SiO_2$ , $Na_2O-SiO_2$ , $K_2O-SiO_2$ $MgO-SiO_2$ , $CaO-SiO_2$ , $BaO-SiO_2$ , $PbO-SiO_2$ $Na_2O-CaO-SiO_2$ $Al_2O_3-SiO_2$
3	ホウ酸塩	$\begin{array}{l} L \ i_2O - B_2O_3 \ \ N \ a_2O - B_2O_3 \ \ K_2O - B_2O_3 \\ Mg \ O - B_2O_3 \ \ C \ aO - B_2O_3 \ \ P \ bO - B_2O_3 \\ N \ a_2O - C \ aO - B_2O_3 \ \ Z \ nO - P \ bO - B_2O_3 \\ A \ i_2O_3 - B_2O_3 \ \ S \ i \ O_2 - B_2O_3 \end{array}$
4	リン酸塩	$ \begin{array}{l} L \ i_2O - P_2O_5, \ Na_2O - P_2O_5 \\ Mg \ O - P_2O_5, \ Ca \ O - P_2O_5, \ Ba \ O - P_2O_5 \\ K_2O - Ba \ O - P_2O_5, \ Si \ O_2 - P_2O_5, \ B_2O_3 - P_2O_5 \\ V_2O_5 - P_2O_5, \ Fe_2O_3 - P_2O_5, \ WO_3 - P_2O_5 \end{array} $
5	ゲルマン酸塩ガラス	$Li_2O-GeO_2$ , $Na_2O-GeO_2$ , $K_2O-GeO_2$ $B_2O_3-GeO_2$ , $SiO_2-GeO_2$
6	タングステン酸塩	Na20-W03 K20-W03
7	モリブデン酸塩	Na20-MoO3. K20-MoO3, L20-MoO3
8	テルル砂塩	Na <sub>2</sub> O-TeO <sub>2</sub>
9	ホウケイ散塩	Na <sub>2</sub> O-B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -S i O <sub>2</sub>
10	アルミノケイ酸塩	Na20-A1203-S102, Ca0-A1203-Si02
11	アルミノホウ酸塩	CaO-Al2O3-B2O3, ZnO-Al2O3-B2O3
12	アルミノホウケイ酸塩	Na20-A1203-B203-SiO2
13	フッ(は物	BeF <sub>2</sub> , NaF-BeF <sub>2</sub> ZrF <sub>4</sub> -BaF <sub>2</sub> -ThF <sub>4</sub> , GdF <sub>3</sub> -BaF <sub>2</sub> -ZrF <sub>4</sub>
14	フツリン砂塩	A! (PO <sub>3</sub> ) 3-A!F3-NaF-CaF <sub>2</sub>
15	オキシハロゲン化物	Ag20-Ag I -P205
16	オキシナイトライド	Mg O-A 12O3-A 1N-S i O2

【0243】<有機EL素子の製造方法>次に、本発明 の有機EL素子の製造方法を説明する。陽極は、蒸着法 30 やスパッタ法等の気相成長法により形成することが好ま しい。

[0244] 陰極は、蒸着法やスパッタ法で形成すると とが可能であるが、有機層上に成膜する点を考慮する と、有機層へのダメージの少ない蒸着法が好ましい。

【0245】発光層等の有機層の形成には、均質な薄膜 が形成できることから真空蒸着法を用いることが好まし い。真空蒸着法を用いた場合、アモルファス状態または 結晶粒径が0. 1μm以下 (通常、下限値は0. 001 μm 程度である。) の均質な薄膜が得られる。結晶粒径 が0.1μm を超えていると、不均一な発光となり、素 子の駆動電圧を高くしなければならなくなり、電荷の注 入効率も著しく低下する。

【0246】真空蒸着の条件は特に限定されないが、1 0<sup>-3</sup> Pa以下の真空度とし、蒸着速度は0. 1~1 nm/se c 程度とすることが好ましい。また、真空中で連続して 各層を形成することが好ましい。真空中で連続して形成 すれば、各層の界面に不純物が吸着することを防げるた め、高特性が得られる。また、素子の駆動電圧を低くし たり、ダークスポットの発生・成長を抑えたりすること 50 し、本発明をさらに詳細に説明する。実施例で使用した

ができる。

【0247】これら各層の形成に真空蒸着法を用いる場 合において、混合層等、1層に複数の化合物を含有させ る場合、化合物を入れた各ボートを個別に温度制御して 異なる蒸着源より蒸発させる共蒸着が好ましいが、蒸気 圧(蒸発温度)が同程度あるいは非常に近い場合には、 予め同じ蒸着ボード内で混合させておき、蒸着すること もできる。

[0248]また、この他、溶液塗布法(スピンコー ト、ディップ、キャスト等)、ラングミュア・プロジェ ット(LB)法などを用いることもできる。溶液塗布法 では、ポリマー等のマトリックス物質(樹脂バインダ ー)中に各化合物を分散させる構成としてもよい。な お、カラーフィルターの形成方法については前述のとお りである。

【0249】本発明の有機EL素子は、通常、直流駆動 型のEL索子として用いられるが、交流駆動またはパル ス駆動することもできる。印加電圧は、通常、 $2\sim 10$ V 程度と従来のものよりも低い。

[0250]

[実施例] 以下、本発明の実施例を参考例とともに示

化合物の構造式を示す。 【0251】 \*【化61】

テトラアリールベンジジン誘導体(No.I-1)

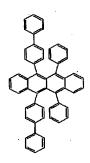


AIQ

フェニルアントラセン誘導体(No.1-1)

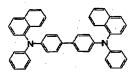
[0252]

※ ※ [化62]



ナフタセン誘導体(No.20)

スチリルアミン誘導体(S-9)



N,N-ジ(1-ナフチル-N,N-ジフェニルペンジジン(NPB)

【0253】<実施例1>ガラス基板上に、ITO透明 電極 (陽極)をスパッタ法にて100 nm成膜した。

ホルダーに固定して、真空槽を $1 \times 10^{-4}$  Pa以下まで減圧した。

【0255】次いで、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス [N-フェニル-N-4-トリル (4-アミノフェニル)] ベンジジン (HIM34) を蒸着速度0.2nm/sec で20nmの厚さに蒸着し、ホール注入層とした。

【0256】N,N,N',N'-テトラキス-(3-ピフェニル-1-イル)ペンジジン (テトラアリールベンジジン誘導体(No.I-1)) を蒸着速度0.2nm/sec で20nmの厚さに蒸着し、ホール輸送層とした。

【0257】さらに、テトラアリールベンジジン誘導体 (No.I-1)と10,10'-ビス[2-ビフェニルイル]-9,9'-ビアンスリル(フェニルアントラセン誘導体(No.1-1))とを体積比が1:3となるように、かつナフタセン誘導体(No.20)を3.0 vol%含むように30 nmの厚さに共蒸着し、混合層タイプの第一の発光層とした。このときの蒸着速 10度は順に0.05 nm/sec、0.15 nm/sec、0.006 nm/secとした。

【0258】また、テトラアリールベンジジン誘導体(No.I-1)とフェニルアントラセン誘導体(No.I-1)とを体積比が1:3となるように、かつスチリルアミン誘導体(S-9)を3.0 vol%含むように50 nmの厚さに共蒸着し、混合層タイプの第二の青色発光層とした。このときの蒸着速度は順に0.05 nm/sec、0.15 nm/sec、0.006 nm/secとした。

【0259】次いで、減圧状態を保ったまま、フェニル 20 アントラセン誘導体(No.1-1)を蒸着速度0.05 nm/se cで20 nmの厚さに蒸着し、電子輸送層とした。また、 トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(A1Q3) を蒸着速度0.2 nm/secで10 nmの厚さに蒸着し、電子 注入層とした。

【0260】さらに、減圧を保ったまま、Cs I を蒸着速度0.05 nm/sec で、0.2 nmの厚さに蒸着し、Cの上にMg Ag(質量比10:1)を蒸着速度0.2 nm/secで200 nmの厚さに蒸着して陰極とし、保護層としてA1を100 nm蒸着し有機EL素子を得た。

[0261] このような有機E L素子は、図1に示されるように、基板1上に陽極2を有し、その上にホール注入層3、ホール輸送層4、混合層タイプの第一の発光層5、混合層タイプの第二の発光層6、電子輸送層7、および電子注入層8をこの順に有し、さらにこの上に、アルカリ金属化合物で形成された陰極下層9と仕事関数の小さい金属で形成された陰極上層10とで構成された陰極を有し、基板1側から発光光を取り出すものである。

【0262】この有機EL素子を、10mA/cmの定電流密度で駆動したところ、初期輝度は1100cd/m²、駆動電圧6.0Vであった。発光色は白色であった。また、輝度の半減期は、100mA/cm²の定電流駆動で初期輝度9000cd/cm²、駆動電圧9.9Vで600時間であり、10mA/cm²の定電流駆動で初期輝度1100cd/cm²、駆動電圧6.0Vで50000時間であった。

【0263】<実施例2>実施例1の素子において、

(テトラアリールベンジジン誘導体(No.I-1)) の代わり に、N, N' -ジ(1-ナフチル) - N, N' -ジフェ ニルベンジジン(NPB)を用いるほかは同様にして素 子を得、同様に特性を評価したところ、白色発光が得ら 50

れ、100mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動で初期輝度9000cd/cm<sup>2</sup>、駆動電圧9.8Vで、輝度半減期500時間であり、10mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動で初期輝度1100cd/m<sup>2</sup>、駆動電圧5.5Vで、輝度半減期35000時間であった。

【0264】<実施例3>実施例1の素子において、混合層タイプの第1の発光層を設けないものとするほかは同様にして素子を得、同様に特性を評価したところ、青色発光が得られ、100mA/cm²の定電流駆動で初期輝度8500cd/m²、駆動電圧7.8Vで、輝度半減期500時間であり、10mA/cm²の定電流駆動で初期輝度900cd/m²、駆動電圧6.0Vで、輝度半減期30000時間であった。

【0265】なお、実施例1、3の有機EL素子の発光スペクトルを図2に示す。実施例1の有機EL素子は白色、実施例3の有機EL素子は青色の発光を示す。

[0266] <参考例1>実施例1と同様に素子を作製した。ただし、電子注入電極として用いたヨウ化セシウムを用いず、A1Q3の上に直接MgAgを蒸着し、電極とした。

【0267】10 mA/cm での輝度は400 cd/m で駆動電圧9.0 vのオレンジ発光となった。発光スペクトルを測定したところ、90%以上がナフタセン誘導体(No.20)からの発光であった。

[0268]また、発光寿命を測定したところ、100 mA/cm の定電流駆動での輝度は4000cd/m で輝度半減時間は4時間であった。特に青色発光の強度の低下が大きかった。

【0269】<参考例2>実施例1と同様に素子を作製30 した。ただし、発光層を(テトラアリールベンジジン誘導体(No.1-1))とフェニルアントラセン誘導体(No.1-1)の混合層ホストからフェニルアントラセン誘導体(No.1-1)の単独ホストとし、ナフタセン誘導体(No.20)とスチリルアミン誘導体(S-9)を同様にドーピングした。

[0270] 10 mA/cm の定電流駆動での輝度は900 cd/m で駆動電圧7. 5 Vのオレンジ発光となった。発光スペクトルを測定したところ、75%以上がナフタセン誘導体(No.20)からの発光であった。

[0271]また、発光寿命を測定したところ、100 mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動での輝度は9000cd/m<sup>2</sup>で輝度半減時間は100時間であった。特に青色発光の強度の低下が大きかった。

【0272】<実施例4> [有機ELディスプレイの作 製]

ガラス基板としてコーニング社製商品名7059基板を中性洗剤を用いてスクラブ洗浄した。

【0273】この基板にカラーフィルターを形成するため、液晶ディスプレイのカラー化手法として最も一般的な顔料分散型のカラーフィルターの塗布・パターニング工程を施した。赤、緑、青各色とも1.0~1.5μm

のフィルター膜厚になるように塗布条件を決め、所望のパターニングを行った。赤色用カラーフィルター材を1000rmで約5秒スピンコートし、100℃で3分プリベークした。露光機でフォトマスクを位置合わせし、20mWの紫外光を30秒照射後に約0.1質量%濃度のTMAH(tetra methyl ammonium hydride)水溶液で現像した。現像時間は約1分であった。この後塗布する別の色のカラーフィルター液に溶解しないように220℃で1時間キュアし、赤色カラーフィルターとした。他の色についても、材料(顔料)が異なるため詳細な形成条件は異なるものの、ほぼ同様な工程を順次行い、カラーフィルターを形成した。

[0274]次に、この後ITOを成膜する面の平坦性を向上させるため、アクリル樹脂のオーバーコート材を塗布し、所望のパターニングを行い、約220℃で1時間キュアして、オーバーコート層を得た。オーバーコート層の厚さは約3μmであった。

【0275】それから透明導電膜としてITOをスパッタ法で約100 nm成膜し、フォトリソグラフィーでレジストパターンを形成した後に希塩酸でエッチングし、レ 20ジストを剥離してITOパターンを得た。

【0276】バターニングした I TO上に絶縁膜としてスパッタ法により S i O₂を成膜し、さらに発光がガラス基板側から見える部分以外に S i O₂が残るようにパターンニングして、S i O₂絶縁膜を約0.1μm厚に形成した。

【0277】次に、実施例1と同様にして、有機EL素子の有機層、陰極および保護層を成膜し、白色、緑色、青色の各ドットを有する有機ELディスプレイを作製した。画素サイズは2mm×2mmで、画素数は各色1ドットとした。

[0278] これを100mA/cm で定電流駆動して各色の発光を確認したところ、各色の輝度とCIE色度は次のようであった。

[0279]

	輝度 cd/m²	CIE x/y
白色	5260	0.32/0.34
赤色	934	0.62/0.34
緑色	2900	0.31/0.50
杏色	744	0.12/0.14

【0280】<実施例5>[単純マトリックス型有機E Lカラーディスプレイの作製]

実施例4と同様に用意した基板をスパッタ装置の基板ホルダーに固定して、A1を約1.5μmの膜厚にスパッタし、連続してTiNを約30nmの膜厚にスパッタしてA1とTiNの積層膜を成膜した。A1とTiNを真空を破らずに連続して成膜しているので、A1層の表面に自然酸化膜が形成されるのが防止され、A1とTiNの良好な接触が得られる。この積層膜をフォトリソグラフィーにより、パターニングして低抵抗配線を形成した。

【0281】カラーフィルターとオーバーコート層は実施例4と同様な方法にて形成した。パターンはTiN層の表面を露出させるようにした。

【0282】それから透明導電膜としてのITOハターンも実施例4と同様な方法にて形成した。これでITOと先に形成した低抵抗A1配線が接続され、カラムラインとなる。

【0283】パターニングしたITO上に絶縁膜としてスパッタ法によりSiO₂を成膜し、さらに発光がガラス基板側から見える部分以外にSiO₂が残るようにパターニングして、SiO₂絶縁膜を約0.1μm厚に形成した。これによりガラス基板側から見えない部分での無駄な発光をさけることができる。またこの部分は孔ないし溝になってしまうため、傾斜した部分に蒸着された有機EL層が薄くなり、電流リークの要因となりやすいが、それも防止できる。

【0284】次に、ポリイミドの濃度を15質量%に調整したものを膜厚2μmになるようにスピン・コートし、145°Cで1時間プリベークし、中間段階のスペーサー膜を形成した。引き続き、ポジレジストを塗布し、所望のフォト・パターンを形成するため露光・現像し、笠状の感光性樹脂体を形成した。ポジレジストの現像時に露出してくるポリイミドの中間段階のスペーサー膜も、現像液でポジレジストに引き続き除去され、最終的なスペーサー形状に形成される。これにより、素子分離構造が形成された。

[0285]次に、実施例1と同様にして、有機EL素子の有機層、陰極および保護膜を成膜し、1画素のサイズが $330\,\mu$ m  $\times 110\,\mu$ m で、画素数 $320\times240$   $\times$ RGBドットの単純マトリックス型カラーディスプレイを作製した。

【0286】これを線順欠駆動したところ、実施例4と同様なCIE色度でカラー発光が得られた。

【0287】<実施例6>実施例4において、位置合わせを行ってカラーフィルター間にブラックマトリックスを設置するほかは同様にしてディスプレイを作製した。同様に駆動したところ、実施例4に比べ、よりシャープな発光光が得られた。ブラックマトリックスも顔料分散型の一般的なものを使用した。

10 【0288】<実施例7>実施例4において、アクリル 樹脂のオーバーコート層を設けてから、その上にさらに SiO,膜を約60m厚に保護膜を設けるものとするほ かは同様にしてディスプレイを作製した。同様に駆動し たところ、実施例4と同様の結果が得られた。また素子 の耐久性がより向上することがわかった。

[0289]

【発明の効果】本発明によれば、青色発光光が効率よく 得られる。さらには青色発光を含めた多色発光への対応 が可能で、高輝度で、長寿命の有機EL素子が得られ 50 る。さらには、その有機EL素子の優れた特性を生か し、カラーフィルターとの組み合わせによる多色発光有 機ディスプレイを作製することができる。

## 【図面の簡単な説明】

【図1】実施例中の有機EL素子の構成を示す概略断面 図である。

[図2] 実施例中の有機EL素子の発光スペクトルを示 すグラフである。

## 【符号の説明】

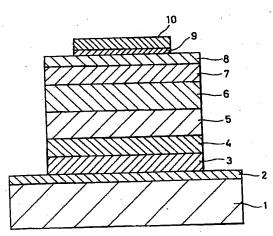
1 基板

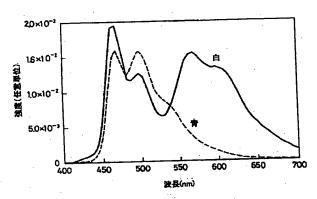
\* 2 陽極

- 3 ホール注入層
- 4 ホール輸送層
- 5 第一の発光層
- 6 第二の発光層
- 7 電子輸送層
- 8 電子注入層
- 陰極下層
- 10 陰極上層

[図2]

【図1】





## フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

H O 5 B 33/22

33/26

FΙ

H 0 5 B 33/22 33/26 テーマコード(参考)

С Z

(72)発明者 藤田 徹司

東京都中央区日本橋一丁目13番 1 号 ティ

ーディーケイ株式会社内

(72)発明者 中谷 賢司

東京都中央区日本橋一丁目13番 1号 ティ

ーディーケイ株式会社内